# PATENT COOPERATION TREATY

# **PCT**

#### **NOTIFICATION OF ELECTION**

(PCT Rule 61.2)

From	tho	INIT	ERN	IΛΤ	ONA	RHR	EALL
From	me	1174	ENI	IA I	UNA	חטח	CAU

To

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202

ngton, VA 22202 ATS-UNIS D'AMERIQUE

Date of mailing (day/month/year) 27 April 2001 (27.04.01)	ETATS-UNIS D'AMERIQUE  In its capacity as elected Office		
International application No. PCT/JP00/05881	Applicant's or agent's file reference		
International filing date (day/month/year) 30 August 2000 (30.08.00)	Priority date (day/month/year) 31 August 1999 (31.08.99)		
Applicant			
SENZAKI, Toshihide et al			

	SLIVZAKI, 103IIIIlue et al
1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	19 February 2001 (19.02.01)
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was
	was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

R. Forax

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

#### (43) 国際公開日 2001 年3 月8 日 (08.03.2001)

#### **PCT**

## (10) 国際公開番号 WO 01/16199 A1

(51) 国際特許分類?: C08G 14/04、 C08L 61/34, C09D 161/34, C09J 161/34

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/05881

(22) 国際出願日:

2000年8月30日(30.08.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願平11/244432 1999年8月31日(31.08.1999) JP 特願2000/200630 2000年7月3日(03.07.2000) JP

- (71) 出願人 /米国を除く全ての指定国について): 新日 鐵化学株式会社 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁 目21番11号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 千崎利英 (SENZAKI, Toshihide) [JP/JP]. 今村高弘 (IMAMURA, Takahiro) [JP/JP]; 〒804-8503 福岡県北九州市戸畑区 大字中原先の浜 46番地の80 新日鐵化学株式会社 総 合研究所内 Fukuoka (JP).

- (74) 代理人: 成瀬勝夫、外(NARUSE, Katsuo et al.); 〒 105-0003 東京都港区西新橋2丁目11番5号 セントラ ル新橋ビル5階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) 指定国 /広域/: ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### 添付公開書類:

- 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: AROMATIC OLIGOMER AND USE THEREOF

\(54)発明の名称:芳香族オリゴマーとその用途

(57) Abstract: An aromatic oligomer represented by the following formula (1):  $(A-F)_n$ -A (wherein A is a segment comprising (a) 30 to 90 wt.% bi- or tricyclic aromatic compound and (b) 10 to 70 wt.% phenol compound; F is methylene or a combination of methylene with  $CH_2OCH_2$ -; and n is a number of 1 to 100). This aromatic oligomer is obtained by reacting a polycyclic aromatic compound such as naphthalene or benzothiophene with a phenol and with formaldehyde or a derivative thereof in the presence of an acid catalyst. This aromatic oligomer is odorless and usable in various applications. In particular, when incorporated in a rubber, resin. etc., the oligomer is highly effective as a tackifier in a wide temperature range or is highly effective in imparting vibration-damping properties.



#### (57) 要約:

本発明は、下記式(1) (A-F)<sub>n</sub>-A (1)

(但し、式中Aは(a) 2 又は3環の芳香族化合物30~90重量%及び(b)フェノール類10~70重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと-CH2OCH2-である。nは1~100の数である。)で表わされる芳香族オリゴマーである。この芳香族オリゴマーは、ナフタレンやベンゾチオフェン等の多環芳香族化合物とフェノール類とホルムアルデヒド類を、酸触媒の存在下で反応させることにより得られる。この芳香族オリゴマーは、臭気のないオリゴマーであり、各種用途に使用され得る。特に、ゴム、樹脂等に配合して広い温度範囲で優れた粘着付与剤としての性能を高度に発現させたり、優れた制振性付与剤としての性能を高度に発現させたりすることができる。

#### 明細書

## 芳香族オリゴマーとその用途

## 技術分野

本発明は、芳香族オリゴマー及びその用途に関する。本発明の芳香族オリゴマーは、樹脂、ゴム等に配合されて、接着剤、粘着剤、鑑料等に粘着性を付与するための粘着付与剤として有用である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、樹脂、ゴム等に配合されて、建材、電化製品、自動車、橋梁、モーター、発電機、エンジン等の振動や騒音が問題となる分野において、室温から170℃程度までの領域で効果のある制振性付与剤として有用である。

## 背景技術

フェノール類とホルムアルデヒド類を酸触媒の存在下で反応させて得られる樹脂は、フェノール樹脂あるいはノボラック樹脂としてよく知られている。また、キシシン等の芳香族炭化水素とホルムアルデヒド類を酸触媒の存在下で反応させて得られる樹脂は、炭化水素樹脂としてよく知られている。更に、インデンークマロン樹脂や石油樹脂も炭化水素樹脂として知られているが、この場合はインデン、クマロンやシクロペンタジエン自体がオレフィン結合を有するため、ホルムアルデヒド類は使用されない。

日本特許(JP)特公昭53-24973号公報(B)には、芳香族油 とホルムアルデヒド類との酸触媒の存在下で反応させて得られた芳香族油 樹脂を塗料配合材として使用することが記載されている。また、特公昭5

9-52887号公報、特開平7-242719号公報 (A) 、特開平8-157571号公報には、フェノール樹脂にサフタンン、メチルサフタンン、アセナフテンを含有させた樹脂組成物が記載されている。

|ホットメルト系接着剤、エマルジョン系接着剤、原圧接着剤等の各種の 粘接着剤や塗料等には接着強度を向上させ、初期接着強度を高める血め粘 着付与剤が添加されることが多い。例えば、特開平10-195047号 公報では、アクリルエマルション系接着剤に各種の粘着付与樹脂を活加す ることを教えている。また、特開平10-158626号公報や特開平6 - 145626号公報では、SBR系プロック共重合体やこれもを水添変 成又はエポキン変成ブロック共重合体系ホットメルト接着剤に、各種の粘 着付与樹脂を添加することを教えている。更に、WO95-12623号 公報では、アクリル系感圧接着剤に、各種の粘着付与樹脂を添加すること を教えている。これらに記載された粘着付与剤は比較的共通しており、イ ンデンークマロン樹脂、石油樹脂、ロジン系樹脂、キシレン樹脂、フェノ ール樹脂、テルベン系樹脂、スチレン系樹脂等である。これもの樹脂は、 基材となる樹脂、ゴム等に対する組合せの適合性、使用温度等の使用条件、 溶媒の有無等で適宜選択されて使用されるが、接着力向上作用、初期接着 強度向上作用等の他、ホットメルト接着剤の場合は、使用温度での異臭が 発生が抑制されることや安価であることなどか要望されている。

炭化水素樹脂を使用し、制振性をコントロールする方法は各種提案されている。たとえば、市販の石油樹脂や、市販のクマロンーインデン樹脂を使用するもの(特開昭63-11980号公報、特開昭62-141069号公報)や、市販のボリブテン、テルペン樹脂若しくは変性ロジンを使用したもの(特開平2-49063号公報)が報告されている。また、多

環芳香族樹脂を使用した例としては、アルキルバンゼンーメチルサフタレン樹脂を使用したもの(特開平7-90130号公報)がある。

ゴム、樹脂、瀝青材料等の基材に配合して制振性を向上させる制振性付与剤は、これを配合した制振材の $\tan\delta$ (損失係数)が使用領域で大きいこと、 $\tan\delta$  の温度依存性が小さいことが望まれる。しかし、この性質は相反することが多いことが知られている。

本発明の目的は、臭気の低い又は臭気の発生しない、新規芳香族オリゴマーを提供することにある。また、本発明の目的は、簡易に得られる制振性付与剤を提供することを目的とする。本発明の他の目的は、粘着付与剤としての性能を高度に発現させ、多環系の粘着付与剤を提供することにある。また、本発明の目的は、広い温度範囲で優れた制振性能を発揮する制振性付与剤を提供することを目的とする。

### 発明の開示

本発明は、下記式(1)

$$(A - F)_{n} - A \qquad (1)$$

(但し、式中Aは(a)  $2\sim 4$  環の芳香族化合物  $3.0\sim 9.0$  重量%及び(b) フェノール類  $1.0\sim 7.0$  重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと・ $CH_2OCH_2$ ーである。 nは  $1\sim 1.0.0$  の数である。 )で表わされる芳香族オリゴマーである。

また、本発明は、含酸素率が20%以下である前記芳香族オリゴマーである。更に、本発明は、前記芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。

更に、本発明は、ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、

アセナフテン、アルオンン、アントラセン、アエナンスンン、ピンン、ペンプチオフェン及びアルオランテンから選ばれる1種又は2種以上の芳香族化合物とフェノール及びアルキルフェノールから選ばれる1種又は2種以上のフェノール類と、ホルマリン、ホルムアルデヒド及びパラホルムアルデヒドから選ばれる1種又は2種以上のホルムアルデヒド類を、反応させて得られる芳香族オリゴマーであって、軟化点か50~180℃である前記の芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂である。

更にまた、本発明は、前記の芳香族オリコマー又は芳香族オリゴマー樹脂を有効成分とする粘着性付与剤又は制振性付与剤である。

以下、芳香族オリゴマースはそれを主成分とする芳香族オリゴマーの製造方法の説明をしつつ、芳香族オリゴマーの発明についても説明する。なお、芳香族オリゴマーの製造方法の発明で得られる芳香族オリゴマーは、純粋な原料を使用しない限り、一般に混合物であって、一般式(1)で表わすことのできない樹脂を含むことがあるが、主成分、すなわち50%以上、好ましくは80%以上は、一般式(1)で表わされる樹脂である。なお、本明細書において、特にことからない限り、純度又は濃度を表わす%は、重量%を意味する。また、芳香族オリゴマー中の成分とは、芳香族イリゴマー中に存在するときの単位又は基についても、単に芳香族化のため、オリゴマー中に存在する単位又は基についても、単に芳香族化合物、フェノール類のようにいうことがある。また、前記芳香族オリゴマーを主成分とする樹脂、すなわち50%以上、好ましくは70%以上、より好ましくは80%以上を含む樹脂を芳香族オリゴマー樹脂という、しかし、説明の簡便化のため、特に矛盾が生じない限り、「芳香族オリゴマー」は、芳香族オリゴマーだけではなく、

芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂を含む意味に解される。

考香族化合物としては、好ましくはナフタンン以上の沸点を有する化合物ではこれらの混合物が望ましい。具体的には、炭素 5~6 員環、酸素を環構成元素として1 個含む酸素 - 炭素 5~6 員環以は硫黄を環構成元素として1 個含む硫黄 - 炭素 5~6 員環から選ばれる芳香族環に1 個以上の環が結合した化合物であり、好ましくは芳香族環が2~4 個縮合した縮合環である。また、これに炭素数 8 以下のアルキル基が1~5 個程度置換したものなどでもよい。

有利には、多環芳香族炭化水素であり、更に好ましくは、ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナフテン、フルオレン、アントラセン、フェナンスンン、ピレン及びフルオランテン等の化合物であり、特に好ましくは、ナフタレン、メチルナフタンン、ジメチルナフタレンである。また、この他、ペンゾチオフェンも好ましいものとして挙げられる。これらは高純度品であってもよいが、これらを主として含む芳香族炭化水素油等の芳香族油であってもよい。芳香族炭化水素油としては、ナフタレン油、メチルナフタレン油、中油等に該当する溜分や、これらの溜分から主たる含有成分を蒸留等で回収して得られる中間製品や残油がある。

芳香族炭化水素油は、芳香族炭化水素が主成分であることはもちろんであるが、N、S、O等を環構成成分として含むヘテロ芳香族化合物や、これらを構成成分として含む官能基を有する芳香族化合物が含まれらる他、反応性のない脂肪族炭化水素等が含まれてもよい。好ましくは、2~3環の芳香族炭化水素が80%以上であり、ナフタレン又はアルキルナフタレン等がその70%以上のものである。なお、未精製の芳香族炭化水素油中

にはフェノール類が含有されることがありうるが、これはフェノール類と して計算する。

本発明で使用するホルムアルデヒド類は、反応系でホルムアルデヒドを 生成するものであればよく、ホルムアルデヒト自体、ホルマリン、バラホ ルムアルデヒド等が使用できるが、パラホルムアルデヒドが有利である。

本発明で使用するフェノール類は、フェノールの他、クレゾール、キシレノール、エープチルフェノール等のアルキルフェノール、レゾルシン、ビロガロール等の多価フェノール、ナフトール等の多環芳香族とドロキシ化合物などが使用できるが、フェノール、炭素数6以下の低級アルキルフェノール等の1価のフェノールが反応性、オリゴマーの物性などの面から望ましい。なお、本発明でいう芳香族化合物として、フェノール類は計算されず、フェノール類として計算される。

本発明の反応でする触媒は酸触媒であり、酸触媒としては、硫酸、燐酸、塩酸等の無機酸、しゅう酸、トルエンスルホン酸等の有機酸、シリカーアルミナ、ゼオライト、イオン交換樹脂、酸性白土等の固体酸などが使用できるが、しゅう酸やトルエンスルホン酸等の有機酸が好ましい。なお、しゅう酸のような熱分解性の触媒であれば、これを除去する操作が省略できるという効果もある。

(a) 芳香族化合物、(b) フェノール類及び(c) ホルムアルデヒド類の使用割合は、これ以外の芳香族化合物の含有量により多少異なるが、次のような割合である。なお、ホルムアルデヒド類のモル比は、ホルムアルデヒド換算で計算したものである。(c) / (a) + (b) (モル比) は、0.1~0.9、好ましくは0.2~0.7、より好ましくは0.4~0.7である。(b) / (a) (重量比) は、10/90~70/30~90、

好ましくは30×70~50×50である。

ホルムアルデヒド類は、芳香族オリゴマーの分子量を上げるためと、ナフタレンを初めとする芳香族化合物の反応率を高めるために必要であるが、多すぎるとゲル化したり、末端メチロール基が多量に残存する恐れが増大する。フェノール類は、芳香族オリゴマーの分子量を上げるために有効であるばかりでなく、適度の極性を与え、全属材料への粘接着性等を改良する作用を有するが、多すぎると炭化水素樹脂としての特性が失われる。芳香族化合物は、芳香族オリゴマーの極性を適度に調整し、SBR等の他の樹脂や溶媒との相溶性を高めたりする作用を有する。

酸触媒の使用量は、酸触媒の種類によって異なるが、一般に反応原料の 0.5~20重量%程度であり、しゅう酸の場合は、5~10重量%程度 が好ましい。

反応条件は、使用する原料、触媒によって異なるが、反応温度が50~180℃、反応時間が0.5~5時間程度が一般的である。この反応では、ホルムアルデヒド類と、芳香族化合物、フェノール類等との反応が生じ、フェノール類が少ないか、存在しない場合は、炭化水素樹脂又はフェノール類変性炭化水素樹脂のようなオリゴマーが生成する。フェノール類を反応系に多量に存在させると、炭化水素変性ノボラック樹脂のようなオリゴマーが生成する。また、溶媒は必要により使用することができる。

反応終了後、これを蒸留にかけ、まず水やホルムアルデヒド等の低沸点物を溜出させ、次いで減圧にして200~250~300℃程度まで昇温して、未反応の原料やその他の溜分を溜出させる。 残留物は芳香族オリゴマーである。なお、反応終了後、必要により触媒除去処理を水洗等により行ってもよく、この場合は反応の進行はここで停止し、行わない場合は蒸

留中も反応が一部進行する。芳香族化合物としてサマタレンスはメチルサフタレン含有油を過剰に使用した場合、未反応の原料として回収されたサフタレン溜分からは、これを晶析では洗浄して精製サフタレンを得ることができる。また、メチルサフタレン割分からは、蒸留では洗浄して精製メチルサフタレンを得ることができる。

このようにして得かれる芳香族オリゴマーは、上記一般式(1)で表されるオリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。式中、Aは(a)アルキル置換又は非置換の2又は4環の芳香族化合物及び(b)フェノール類を主とする成分であり、(b)/(a)の重量比が10/90~30/70であり、Fはメチレンスはメチレンと一CH $_2$ ОC H $_2$ ーである。好ましくは、Fは100モル%又は90モル%以上、より好ましくは95モル%以上がメチレンであることがよいが、用途によっては20~30モル%か・CH $_2$ ОС H $_2$ ーであってもよい。

nは1~100の数であり、好ましくは数平均が2~20の範囲である。 好ましい数平均分子量は300~1000の範囲であり、重量平均分子量は500~2000の範囲であり、その比は15~3の範囲である。また、この芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂は、は、軟化点が50~180℃、好ましくは70~160℃の範囲にあることがよい。軟化点が低すぎると臭いが生じることがあり、高すぎると相溶性や粘着付与性が低下する。なお、芳香族オリゴマー王成分とする芳香族オリゴマー樹脂は、芳香族化合物として単環又は3環以上の化合物を2~3環の芳香族化合物と共に少量使用した場合や、反応条件を変化させて式(1)で表される化合物以外の化合物が少量副生する場合等に得られる。

また、この芳香族オリゴマーは、触媒にシュウ酸を使用し、高温処理し

たものは、ボルムアルデヒド類由来の酸素はほぼ完全に系外へ脱離してしまうことが判明した。一方、硫酸法でマイルドな条件下で反応を行うと、ボルムアルデヒド類由来の酸素が残ってしまうことが判明した。これは、メチレン結合で芳香環がつながるか、一CH2O-CH2-などのエーテル結合で芳香環がつながるかの差異によるものと考えられる。本発明の芳香族オリゴマーは、エーテル結合に由来する酸素含有率が3wt%以下、好ましくは1wt%以下であることが望ましく、アルキルフェノール等のフェノール類に由来する酸素を含めた全酸素含有率が20wt%以下、好ましくは15wt%以下であることがよい。

本発明の芳香族オリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂は、粘着性付与剤としてばかりでなく、制振性付与剤として優れた性能を示すが、制振性付与剤としてより優れた性能を生じさせるためには、次のような芳香族オリゴマーであることがよい。

この芳香族オリゴマーは、芳香族化合物原料とフェイール類とホルムアルデヒド類を反応原料として得ることができるが、芳香族化合物原料は、ナフタレン、ベンゾチオフェンから選ばれる1種又は2種の2環の芳香族化合物を主とする原料であることがよく、かかる原料としては、ナフタレン又はベンゾチオフェンのみからなるもの、両者からなるもの、これらと少量のその他の芳香族化合物とからなるものなどがある。

前記その他の芳香族化合物としては、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナフテン、アルオレン、アントラセン、フェナンスレン等の化合物が挙げられ、好ましくは、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン等の2環の芳香族化合物である。式(1)で表わされる樹脂を得るための芳香族化合物とフェノール類の有利な組成は、ナフタレンとベンゾチオフ

エンの多環芳香族化合物の合計が30~90%、好ましくは60~80%、フェノール類が20~40%からなるものであり、少量のメチルナフタレン等のその他の芳香族化合物が含有され得る。多環芳香族化合物中のナフタレンとペンゾチオフェンの割合は、ナフタレン10~100%、好ましくは30~97%、ペンソチオフェン0~100%、好ましくは10~70%である。

ナフタレンを90%以上含有する芳香族炭化水素油又はペンプチオフェンを10%以上含有する芳香族油は、高純度品であってもよいが、これらを主として含む芳香族炭化水素油等であってもよい。芳香族炭化水素油としては、タール油系のナフタレン油、メチルナフタレン油、中間油等に該当する溜分や、これらの溜分から主たる含有成分を蒸留等で回収して得られる中間製品や残油がある。

ナフタレンを90%以上含有する芳香族炭化水素油は、精製ナフタレンであってもよいが、好ましい例としては、95%級ナフタレン等が挙げられる。これには、その他の成分としてベンゾチナフェンやメチルナフタレン等が含まれ得る。

また、ペンゾチオフェンを10%以上含有する芳香族油は、好ましくは、ベンゾチオフェンが30%以上であり、芳香族炭化水素が30%以上であり、ナフタレンか25%以上のものである。好ましい例としては、粗ナフタレンから精製ナフタレンを得る際に副生するベンゾチオフェンが10~50%に濃縮され、ナフタレンが70~40%に減少した副生油が挙げられる。

フェノール類及びホルムアルデヒド類の種類とこれらの配合割合は、前 記と同様な種類、割合が使用できる。また、触媒や反応条件も前記と同様

な条件が使用できる。そして、多環芳香族化合物は、制振性を向上させ、 芳香族オリゴマーの極性を適度に調整し、SBR等の他の樹脂やゴムや溶 媒との相溶性を高めたりする作用を有する。

このようにして得られる芳香族オリゴマーは、上記式(1)で表される芳香族オリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。芳香族オリゴマー又は芳香族オリコマー樹脂の好ましい数平均分子量は300~1000範囲であり、重量平均分子量は500~2000範囲であり、その比は1.5~3の範囲である。また、この芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂は、軟化点が50~180℃、好ましくは70~160℃の範囲にあることがよい、軟化点が低すぎたり、高すぎたりすると良好な制振性を示す温度範囲が常用使用範囲からづれたり、相溶性が低下したりする。

## 図面の簡単な説明

図1及び図2は、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与材として使用 した時のtan δ と温度の関係を示すグラフである。

# 発明を実施するための最良の形態

本発明の芳香族オリゴマー(芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂を含む。以下同じ。)は、単独若しくは公知の粘着付与剤や他の添加剤と共に粘着付与剤として使用することができる。例えば、クロロプレン、SBR等のゴム系のホットメルト接着剤や酢酸ビニルやボリビニル化合物系のホットメルト型の接着剤やアクリル系の感圧接着剤又は乳化接着剤やエポキン樹脂等の硬化型の接着剤や塗料等に、粘着性を付与ス

は高めるために、粘着付与剤として配合されて使用される。有利には、SBR等のゴム系の接着剤に配合されて使用される。この場合、基材樹脂のゴムは、クロロフレン、SBR等の合成ゴム、天然ゴム、これらを水添等により変成したものなど公知のものが使用でき、その他安定剤、滑剤、充填剤、軟化剤等を接着剤中に配合することができる。粘着付与剤としての芳香族オリゴマーの配合量は、基材のゴム又は樹脂100重量部に対し、50~400重量部、好ましくは100~300重量部の範囲である。

また、本発明の芳香族オリゴマーは、制振性付与剤として使用することができる。この場合、前記芳香族オリゴマーはそのまま使用してもより、精製したり、分子量分画したりしたのち使用してもよい。制振性付与剤として使用される本発明の芳香族オリゴマーは、制振材として使用される樹脂、ゴム、瀝青物等に配合されて使用する。この際、制振材中に本発明の制振性付与剤の他に、公知の制振性付与剤や、カーボンブラック、炭酸カルシウム、酸化チタン、クレー、タルク、マイカ、アルミナ等の充填材、プロセスオイル、酸化防止材等の各種添加剤を配合することができる。

有利には、SBR、ブチルゴム、天然ゴム、ジエン系ゴム、クロロプレン、これらの水添変成ゴム等のゴム又はEVA(エチレン酢酸ビニル樹脂)等の弾性を有する樹脂に、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与剤として10~70%、好ましくは30~60%配合して使用する。また、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与剤として複数組合せて使用すれば、より広い温度範囲において良好な制振性を与えることができる。また、同様に他の制振性付与剤と組合せて使用すれば、他の制振性付与剤の欠点を改良することができる。

以下、本発明の実施例を示す。実施例中、%は重量%であり、部は重量

部である。

### 実施例1

石炭系の95%ナマタレン(硫黄分5000ppm)134部、p-ターシャリプチルフェノール68部及び98%ハラホルムアルデヒド34部を、プラスコに仕込み、これを110℃保ち、しゅう酸22部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。200℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。200℃からは100mmHgの減圧にして蒸宿を行ない270℃まで昇温し、ナフタレン溜分を溜出させた。ナフタレン溜分は100部であり、その純度は99.9%以上であった。また、フラスコからは、軟化点113.6℃、数平均分子量548、重量平均分子量1459のオリゴマーA120部を得た。

## 実施例2

石炭系のメチルナフタレン混合物(硫黄分5200ppm) 1 7 6 部、 p ーターシャリプチルフェノール 8 0 部及び 9 8 %パラホルムアルデヒド 4 4 部を、フラスコに仕込み、これを 1 1 0 ℃に保ち、しゅう酸 2 3 部を添加した。次いで、撹拌しつつ 1 3 0 ℃で 2 . 5 h r 反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。2 0 0 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 2 0 0 ℃からは 1 0 0 m m H g の減圧にして蒸留を行ない 2 7 0 ℃まで昇温し、メチルナフタレン溜分を溜出させた。メチルナフタレン溜分は 1 3 1 部であった。また、フラスコからは、軟化点 1 4 0 . 7 ℃のオリゴマーB 1 3 9 部を得た、

#### 実施例3

石炭系のアントラセン混合物(硫黄分6000ppm) 3 1 0 部、 p − ターシャリブチルフェノール1 0 6 部及び 9 8 % ハラホルムアルデヒド 5 2 部を、フラスコに仕込み、これを1 1 0 ℃に保む、しゅう酸 2 8 部を添加した。次いで、撹拌しつつ1 3 0 ℃で2. 5 h r 反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。2 0 0 ℃ からは 1 0 0 m m H g の減圧にして蒸留を行ない2 8 0 ℃まで昇温し、アントラセン溜分を溜出させた。アントラセン溜分は1 9 1 部であった。また、フラスコからは、軟化点 1 0 5 . 0 ℃のオリゴマー C 2 3 5 部を得た。

実施例1~3と同様にして、芳香族化合物及びフェノール類の種類を変えて、オリゴマーD~Hを得た。結果を表 I に示す。表中、N はナフタレンを示し、M N はメチルナフタレンを示し、A N はアントラセンを示し、混合油はこれらを主とする芳香族油留分を示し、P h はフェノールを示し、P T B P はパラターシャリーブチルフェノールを示す。また、M n は数平均分子量を示し、M w は重量平均分子量を示す。また、含酸素率は、オリゴマーの元素分析値(重量%)であり、実施例 1 のオリゴマーA は 5 . 4 、実施例 2 のオリゴマーB は 6 . 2 、実施例 3 のオリゴマーC は 4 . 8 であった。

【表1】

オリコー	芳香族化合物	751-1	触媒	Мп	M w	軟化	含酸素率
マー		類				点で	(wt%)
D	N	なし	硫酸	407	993	75.7	13.0
Е	N	Ρh	硫酸	461	916	92.6	5.9
F	α - M N	Ρh	硫酸	399	742	78.3	4.8
G	MN混合油	PTBP	蓚酸	654	1498	120	5.2
Н	AN混合油	PTBP	蓚酸	499	1423	156	3.8

## 実施例4

SBRに、実施例  $1 \sim 3$  で得られたオリゴマー  $A \sim C$  を 20% 又は 50% 添加した樹脂組成物を、サイズ  $150 \times 25 \times 1.5$  mm O SUS 304 (JIS 64305 準拠) 板 2 枚の間に、接着面積  $10 \times 25$  mm 2 となるように入れ、 1.7.5 2 で 2 分間予熱し、 5.0 kg 1 cm 2 の圧力で、 1.5 間 1 ンスして、試験片を調整し、各々島津オートグラフAGS 1 の 1 公 A装置を使用して引張りせん断接着力を測定した。なお、試験サンプル調整過程でオリゴマーに起因する異臭は感じられなかった。

#### 比較例1

比較のため、SBRを単独で実施例1と同等の方法で引っ張りせん断接着力を測定した。

#### 比較例2

SBRに市販のキシレン樹脂(三菱瓦斯株式会社製 HP-120)を50%添加した樹脂組成物について、実施例1と同等の方法で引っ張りせん断接着力を測定した。

結果をまとめて表2に示す。

## 【表2】

オリゴマ	主たる芳香族化合	測定值
	‡ <sup>4</sup> 7	(kgf/cm <sup>+</sup> )
A	ナフタレン	8.0
В	メチルナフタレン	7 5
С	アントラセン	7.0
なし		1 6
H P -120	キシンン	4 5

#### 実施例5

石炭系の粗ナフタレン(ナフタレン含有率 96%)を135部、p-ターシャドフチルフェノール68部及び92%パラホルムアルデヒド37部を、フラスコに仕込み、これを110℃に保ち、しゅう酸23部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。

反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。 200 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 200 ℃ からは 50 mm H g の減圧にして蒸留を行ない 270 ℃まで昇温し、未反応原料を溜出させた。回収原料留分は 66 部であった。また、フラスコ中に残る樹脂分は、軟化点 110 ℃の芳香族オリゴマー 120 部であった。

この芳香族オリゴマー」とEVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社)を重量比で1:1で使用し、THFを使用して溶液を調製する。次に、この溶液に小さなスプリング(外径5mm、長さ29mm)を含浸後、室温で24時間乾燥してスプリング間隙に樹脂系材料とゴム系材料が混合された皮膜を形成させて、DSA(Dynamic Spring Analysis)法による制振特性評価用試料を調製した。

このようにして調製したサンプル(1)を測定器(株オリエンテック: RHEOBIBRON DDV-II-EP)でマイナス 1 1 0 C から 1 5 0 C の範囲の動粘度を測定し、その結果を $tan \delta$  一温度として図 1 に示す。

実施例 6

石炭系の粗ナフタレンを晶析して精製ナフタレンを分離して得られる残油 (ベンゾチオフェン含有率 40%、ナフタレン含有率 57%)を135部、pーターシャリブチルフェノール68部及び92%パラホルムアルデヒド37部を、フラスコに仕込み、これを110℃に保ち、しゅう酸23部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。

反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。 200 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 200 ℃ からは 50 mm H g の減圧にして蒸留を行ない 270 ℃まで昇温し、未反応原料を溜出させた。 回収原料留分は 66 部であった。 また、フラスコ中に残る樹脂分は、軟化点 126 ℃の芳香族オリコマー 151 部であった。

この芳香族オリゴマーKとEVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社)を重量比で1:1の割合で使用し、実施例1と同様にして制振特性評価用サンプル(2)を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果を $tan\delta$ ー温度として図1に示す。

なお、実施例 5 の 芳香族オリゴマー J の含酸素率 (wt%) は、5 . 4 %、 実施例 6 の 芳香族オリゴマー K の含酸素率 (wt%) は、4 . 8 % であった。 実施例 7

実施例をで得られた芳香族オリゴマー」とSBR(タフプレンA、旭化

成工業株式会社製)を重量比で1:1の割合で使用し、実施例1と同様にして制振特性評価用サンプル(3)を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果をtano一温度として図2に示す。比較例3

芳香族オリゴマーは使用せずに、EVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社製)をTHFを使用して溶液を調製した他は、実施例1と同様にして制振特性評価用サンフル(4)試料を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果を $tan \delta$  一温度として図1に示す。

#### 比較例 4

芳香族オリゴマーは使用せずに、SBR(タフプレンA、旭化成工業株式会社製)をTHFを使用して溶液を調製した他は、実施例1と同様にして制振特性評価用サンプル(5)を調製し、マイナス110 $\mathbb C$ から150 $\mathbb C$ の範囲の動粘度を測定した。その結果を $\tan \delta$  ー温度として図2に示す。

図 1 に示すように E V A 単独のサンプル (4) (比較例 3)は、-5.2 で から 1.6.8 での範囲に  $\tan \delta$  値 =0.120 の なだらかなピークが見られる。一方、実施例 5 の芳香族オリゴマー J を配合したサンプル (1) では、40.6 でに  $\tan \delta = 0.530$  の鋭いピークが観察され、制振性を付与できていることが分かる。

更に、実施例6の芳香族オリゴマーKを配合したサンプル(2)では、62.6 ℃に0.245 及び175 ℃に0.409 のヒークが観察され、より高温度領域の制振性が期待できる。

このように本発明の芳香族オリゴマーを選択することで制振性の領域をコントコールすることが可能である。

次に、図 2 に示すように S B R 単独のサンフル (5) (比較例 4)では、-75. 4  $\mathbb{C}$  に 0.05 0.0

ー方、実施例7の芳香族オリゴマーJを配合したサンフル(3)では、 100.5℃にtanδ 0.575のヒークが観察され、この温度での制振性を増加させていることが分かる。

このように多環芳香族オリゴマーを選択することで制振性の領域をコン トロールすることが可能である。

## 産業上の利用可能性

本発明の芳香族オリゴマーは、臭気もしないため、使用環境の面からも有用である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、ホットメルト接着用途等の粘着付与剤として優れる。更に、本発明の芳香族オリゴマーは、優れた制振性を与えることができる。また、本発明の芳香族オリゴマーは、比較的容易に得ることが可能である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、単独で又はこれを組合せて使用すれば、広い温度範囲で優れた制振性を与えることができる。

### 請求の範囲

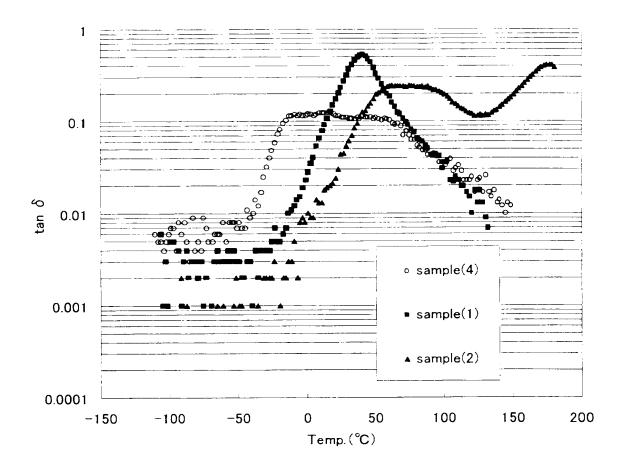
(1) 下記式(1)

 $(A - F)_{n} - A \tag{1}$ 

(但し、式中Aは(a) 2 又は3 環の芳香族化合物30~90重量%及び(b) フェノール類10~70重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと・CH<sub>2</sub>O CH<sub>2</sub>-である。nは1~100の数である。)で表わされる芳香族オリゴマー。

- (2) 含酸素率が20%以下である請求項1に記載の芳香族オリゴマー
- (3) 請求項1記載の芳香族オリコマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂。
- (4) ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナフテン、フルオンン、アントラセン、フェナンスレン、ビンン、ベンゾチオフェン及びフルオランテンから選ばれる1種又は2種以上の芳香族化合物とフェノール及びアルキルフェノールから選ばれる1種又は2種以上のフェノール類と、ホルマリン、ホルムアルデヒド及びパラホルムアルデヒドから選ばれる1種又は2種以上のホルムアルデヒド類を、反応させて得られる芳香族オリゴマーであって、軟化点が50~180℃である請求項1に記載の芳香族オリゴマー。
- (5) 請求項1に記載の芳香族オリゴマーを有効成分とすることを特徴とする粘着性付与剤。
- (6) 請求項1に記載の芳香族オリゴマーを有効成分とすることを特徴とする制振性付与剤。

Fig. 1



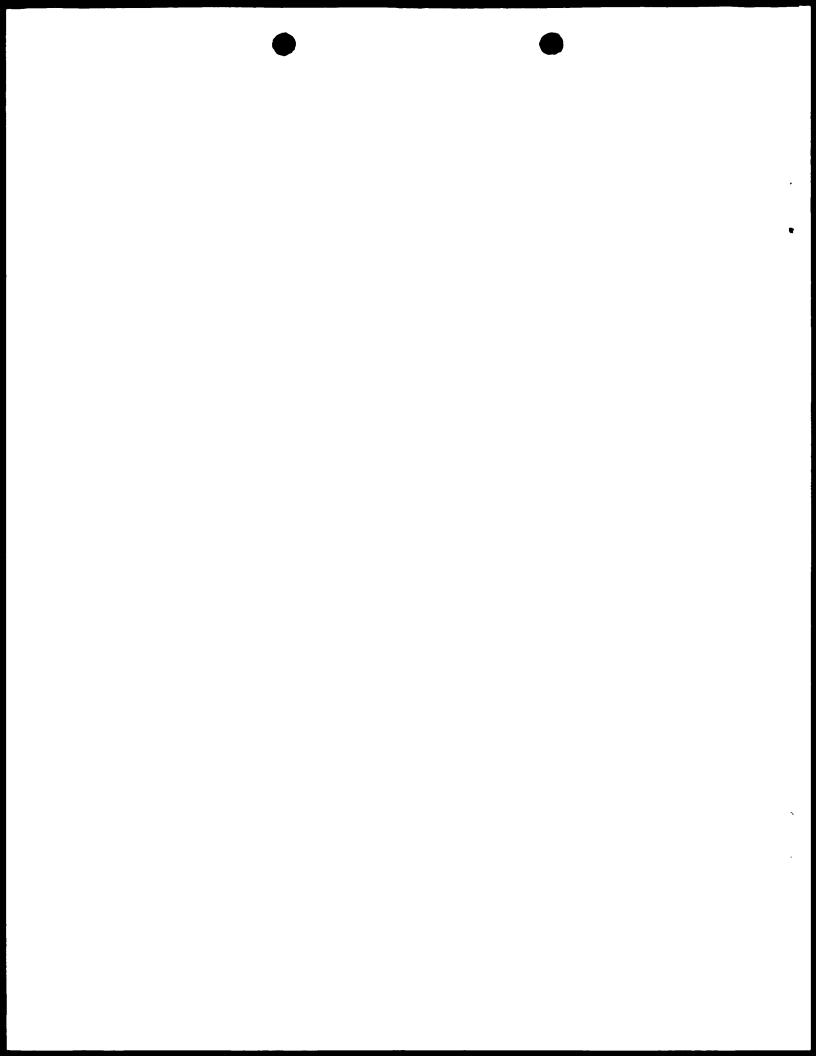
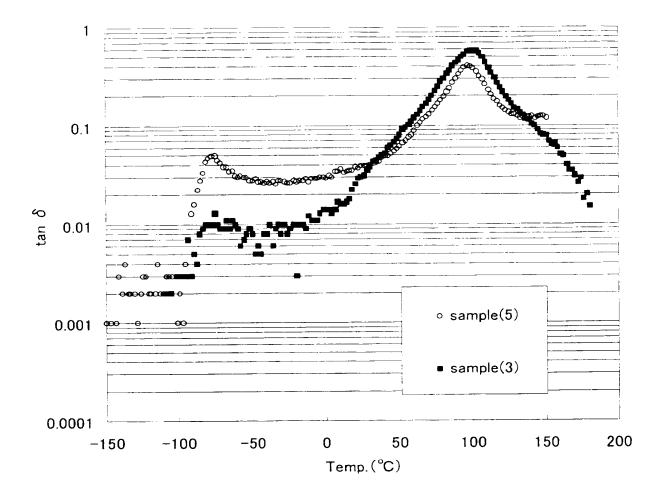
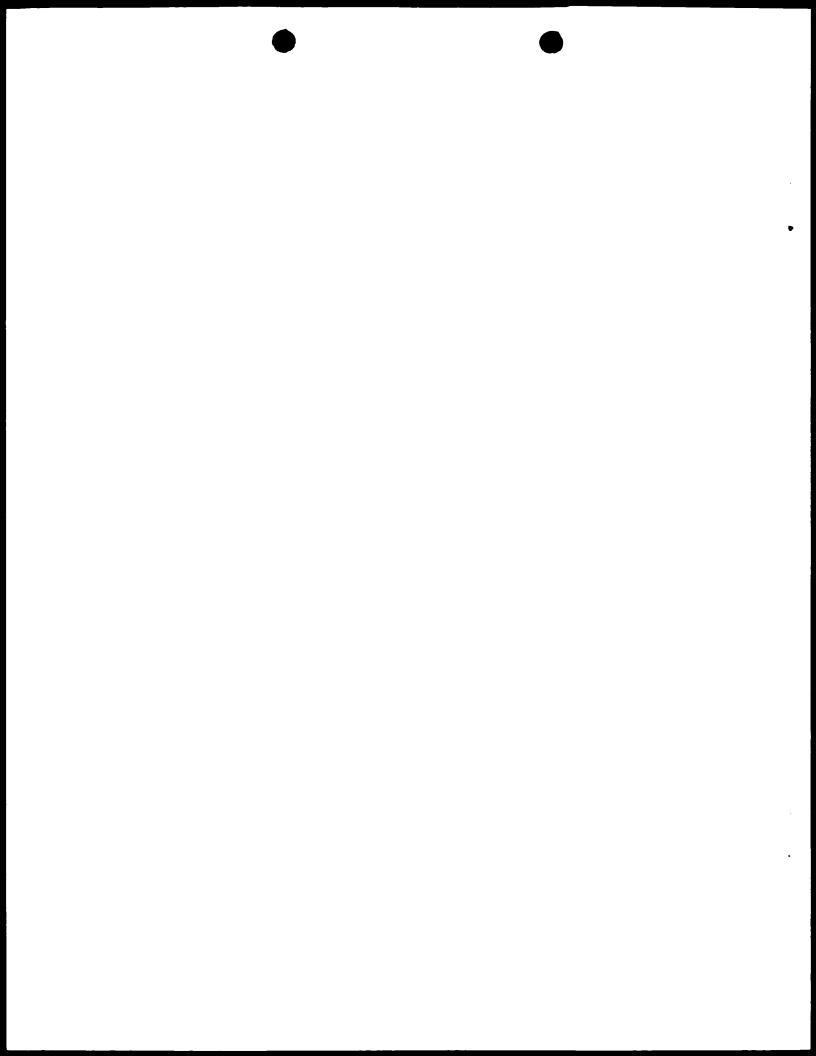


Fig. 2





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05881

A. C	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER					
	Int.Cl <sup>7</sup> C08G 14/04 C09D161/34					
	C08L 61/34 C09J161/34					
		Laconstinual Detait Classification (IDC) and both so	tional alassification and IDC			
		International Patent Classification (IPC) or to both na	tional classification and IPC			
		SSEARCHED				
	um do Int.	ocumentation searched (classification system followed	by classification symbols) .61/00-34			
-	inc.	C1 <sup>7</sup> C08G 14/00-14 C09D1 C08L 61/00-34 C09J1	61/00-34			
		COBE 01/00 34 CODO	101/00 31			
D		on searched other than minimum documentation to the	e autout that such decuments are included	in the fields seemed		
		on searched other than minimum documentation to the uyo Shinan Koho 1926-1996				
		i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000				
		ata base consulted during the international search (nam	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)		
	CAS WPI/	ONLINE T				
y	WPI/	ц				
C. D	OCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
<u> </u>			Sala allaman	Datamanta alaim No		
Catego		Citation of document, with indication, where ap		Relevant to claim No.		
X		JP, 11-199656, A (NIPPON KAYAKU	J CO., LTD.),	1,3		
A		27 July, 1999 (27.07.99), Claim 1 (Family: none)		2,4-6		
		Claim 1 (ramily: none)				
Х		JP, 4-277575, A (Nippon Steel (	Chemical Co., Ltd.).	1,3-4		
A		02 October, 1992 (02.10.92),	,,	2,5-6		
		Claims 1 to 2 (Family: none)		·		
X		JP, 4-277576, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	.	02 October, 1992 (02.10.92),		2,5-6		
		Claim 1; page 2, left column, I	lines 42 to 50			
		(Family: none)				
Х		JP, 4-277578, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A		02 October, 1992 (02.10.92),	,	2,5-6		
		Claim 1; page 2, left column, 1	lines 43 to 50			
		(Family: none)				
X		JP, 4-96915, A (Nippon Steel Ch	iemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	.	30 March, 1992 (30.03.92), Claims; page 2, upper left colu	umn lines 17 to 20	2,5-6		
		(Family: none)	mui, liles i, co 20			
<u> </u>						
⊠ F	urther	documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
		categories of cited documents:	"T" later document published after the inte			
		nt defining the general state of the art which is not ed to be of particular relevance	priority date and not in conflict with the understand the principle or theory under			
"Е" е	earlier o	ocument but published on or after the international filing	"X" document of particular relevance; the o	claimed invention cannot be		
	iate focume	nt which may throw doubts on priority claim(s) or which is	considered novel or cannot be consider step when the document is taken alone			
		establish the publication date of another citation or other	"Y" document of particular relevance; the o	claimed invention cannot be		
		reason (as specified) nt referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	considered to involve an inventive step combined with one or more other such	_		
	means combination being obvious to a person skilled in the art					
"P" document published prior to the international filing date but later "&" document member of the same patent family than the priority date claimed						
		<u> </u>	Date of mailing of the international sear	ch report		
Date of the actual completion of the international search 28 November, 2000 (28.11.00)			05 December, 2000 (C			
_		(20.22.00)		, _ , ,		
				<del></del>		
		ailing address of the ISA/	Authorized officer			
Ĺ	Japa	nese Patent Office				
Facsimile No.		).	Telephone No.			

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05881

ategory*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
X A	JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chem. Co., Ltd.), 15 October, 1983 (15.10.83), Claims (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 22 March, 1994 (22.03.94), Claim 1; page 4, right column, the 22 <sup>nd</sup> line from the bottom to the 5 <sup>th</sup> line from the bottom (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	GB, 1259910, A (NAUCHINO-ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organized and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics), 12 January, 1972 (12.01.72), Claims; EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2014175, A & FR, 2086766, A	1,3-4 2,5-6
X A	JP, 2-274714, A (KASHIMA OIL COMPANY, LIMITED), 08 November, 1990 (08.11.90), Claims; page 3, lower right column, lines 3 to 18 (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July, 1983 (26.07.83), Claims (Family: none)	1,3 2,4-6
i		

#### 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))					
Int.	C1 <sup>7</sup> C 0 8 G 1 4 0 4 C 0 8 L 6 1 3 4	C 0 9 D 1 6 1 / 3 4 C 0 9 J 1 6 1 / 3 4			
B. 調査を行	テった分野				
調査を行った最	<b>最小限資料(国際特許分類(IPC))</b>				
Int.	C1 <sup>7</sup> $C \ 0 \ 8 \ G \ 1 \ 4 \ (0 \ 0 - 1 \ 4 \ C \ 0 \ 8 \ L \ 6 \ 1 \ (0 \ 0 - 3 \ 4 \ )$	C 0 9 D 1 6 1 / 0 0 - 3 4 C 0 9 J 1 6 1 / 0 0 - 3 4			
日本 日本 日本	木の資料で調査を行った分野に含まれるもの国実用新案公報1926-1996年国公開実用新案公報1971-2000年国実用新案登録公報1996-2000年国登録実用新案公報1994-2000年				
国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)			
1	AS ONLINE PI/L				
	ると認められる文献		BR'+ L-		
引用文献の カテゴリー*	   引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	ときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号		
X A	JP,11-199656,A(日本化27.7月.1999(27.07.99	:薬株式会社)	1, 3 2, 4-6		
X A	JP,4-277575,A(新日鐵化 2.10月.1992(02.10.92		1, 3-4 2, 5-6		
X A	JP,4-277576,A(新日鐵化 2.10月.1992(02.10.92 請求項1,第2頁左欄第42~50行(ファ	)	1,3-4 2,5-6		
x C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。		
もの 「E」国際出版 以優先権。 「L」優先権。 日若し。 文献(F	のカテゴリー 車のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 質目前の出願または特許であるが、国際出願日 公表されたもの 主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 くは他の特別な理由を確立するために引用する 理由を付す) よる開示、使用、展示等に言及する文献 質日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表。 出願と矛盾するものではなく、多の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、多の新規性又は進歩性がないと考え 「Y」特に関連のある文献であって、多上の文献との、当業者にとってしよって進歩性がないと考えられる「&」同一パテントファミリー文献	発明の原理又は理論 当該文献のみで発明 さられるもの 当該文献と他の1以 自明である組合せに		
国際調査を完	了した日 28.11 00	国際調査報告の発送日 05	.12.00		
日本[	の名称及びあて先 国特許庁(ISA/JP) <b>単便番号100-89</b> 15	特許庁審査官(権限のある職員) 前田 孝泰 - 印	: :		
i	部千代田区霞が関三丁日4番3号	電話番号 03-3581-1101	内線 3457		

#### 国際調査報告

# 国際出願番号 PCT/JP00/05881

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP,4-277578,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92) 請求項1,第2頁左欄第43~50行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,4-96915,A(新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992(30.03.92) 特許請求の範囲,第2頁左上欄第17~20行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,58-176210,A(新日本製鉄化学工業株式会社) 15.10月.1983(15.10.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	JP,6-80766,A(松下電器産業株式会社) 22.3月.1994(22.03.94) 請求項1,第4頁右欄下から第22行~下から第5行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
XA	GB, 1 2 5 9 9 1 0, A (NAUCHINO—ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organised and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics) 1 2. 1月. 1 9 7 2 (1 2. 0 1. 7 2) 特許請求の範囲, EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2 0 1 4 1 7 5, A & FR, 2 0 8 6 7 6 6, A	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,2-274714,A(鹿島石油株式会社) 8.11月.1990(08.11.90) 特許請求の範囲,第3頁右下欄第3~18行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	US,4395498,A(Minnesota Mining and Manufacturing Company)26.7月.1983(26.07.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6

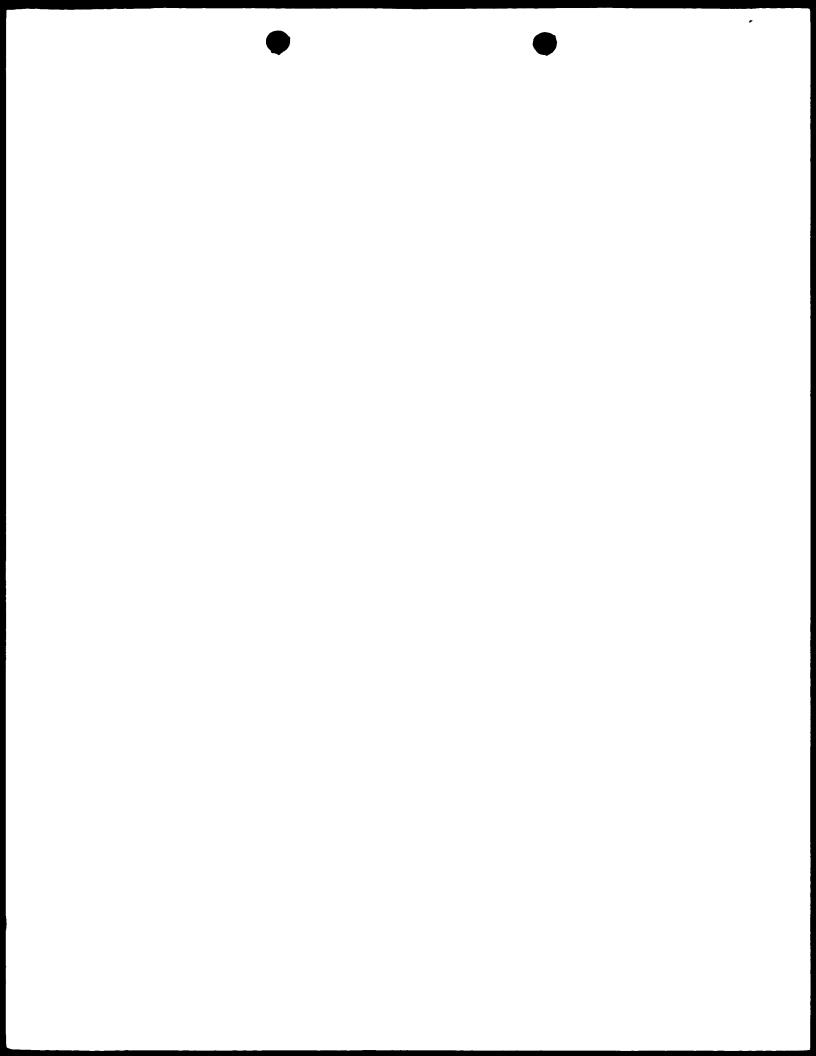


PCT

#### 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

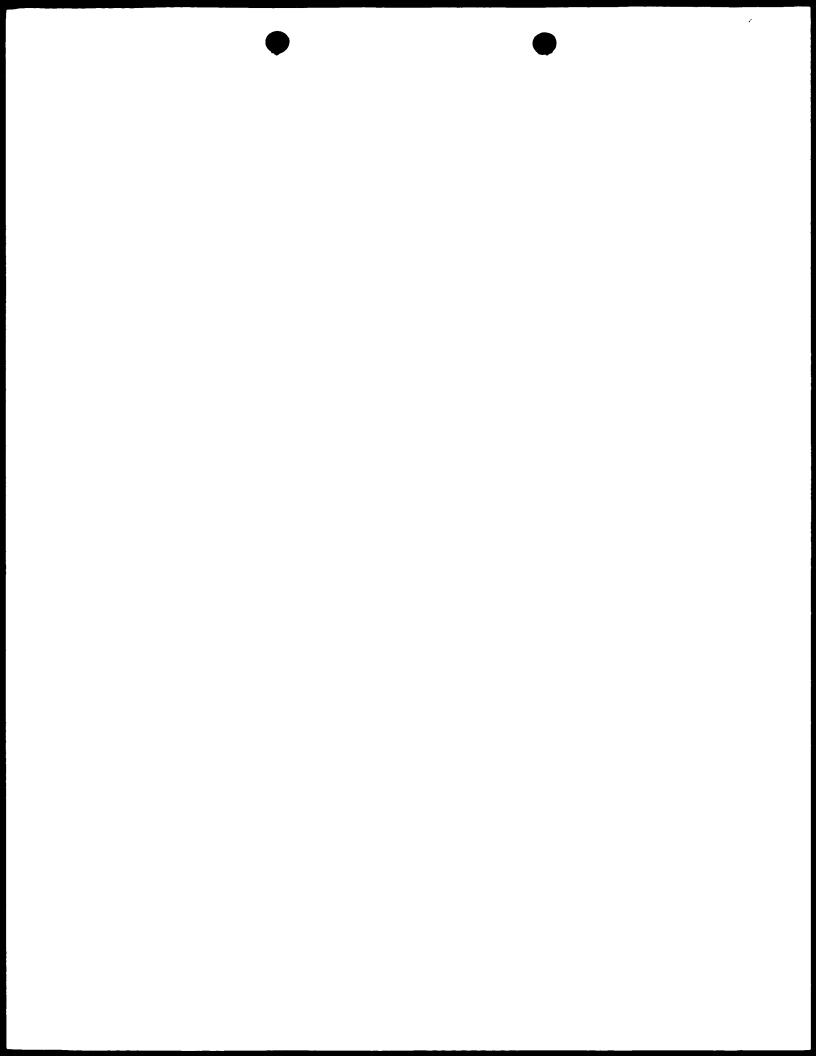
出願人又は代理人 の書類記号 NTK00-1287	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/22 及び下記5を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/05881	国際出願日(日.月.年)	30.08.00	優先日 (日.月.年)	31.08.99	
出願人 (氏名又は名称)	新日銀	<b>被化学株式</b> 会社			
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される		見則第41条(PCT18	3条)の規定に従い	出願人に送付する。	
この国際調査報告は、全部で3	ページである	i.			
この調査報告に引用された先行打	技術文献の写しも	5 添付されている。			
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除ぐ この国際調査機関に提出さ				った。	
b. この国際出願は、ヌクレオチ この国際出願に含まれる書		己列を含んでおり、次⊄	)配列表に基づき国[	祭調査を行った。	
この国際出願と共に提出さ			表		
出願後に、この国際調査機 出願後に、この国際調査機			たとる配列表		
出願後に、この国际調査機 出願後に提出した書面によ 書の提出があった。				事項を含まない旨の陳述	
書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキ	シブルディスクによる	配列表に記録した配	別が同一である旨の陳述	
2. 請求の範囲の一部の調査が	ぶできない (第 I	欄参照)。			
3. 発明の単一性が欠如してい	ヽる(第Ⅱ欄参照	ġ) 。			
4. 発明の名称は x 出願	<b>賃人が提出したも</b>	のを承認する。			
□ 次に	<b>エ示すように国際</b>	際調査機関が作成した。			
- 5. 要約は x 出願	<b>賃人が提出したも</b>	のを承認する。			
园团	際調査機関が作成		国際調査報告の発達	則38.2(b)) の規定により 送の日から1カ月以内にこ	
6. 要約書とともに公表される図は、 第 図とする。 □ 出願	<b>〔</b> 人が示したとお	<b>らりである。</b>	□ なし		
與出 (x)	[人は倒を示さな	かった。			
一 本図	]は発明の特徴を	・一層よく表している。			



#### 国際調査報告

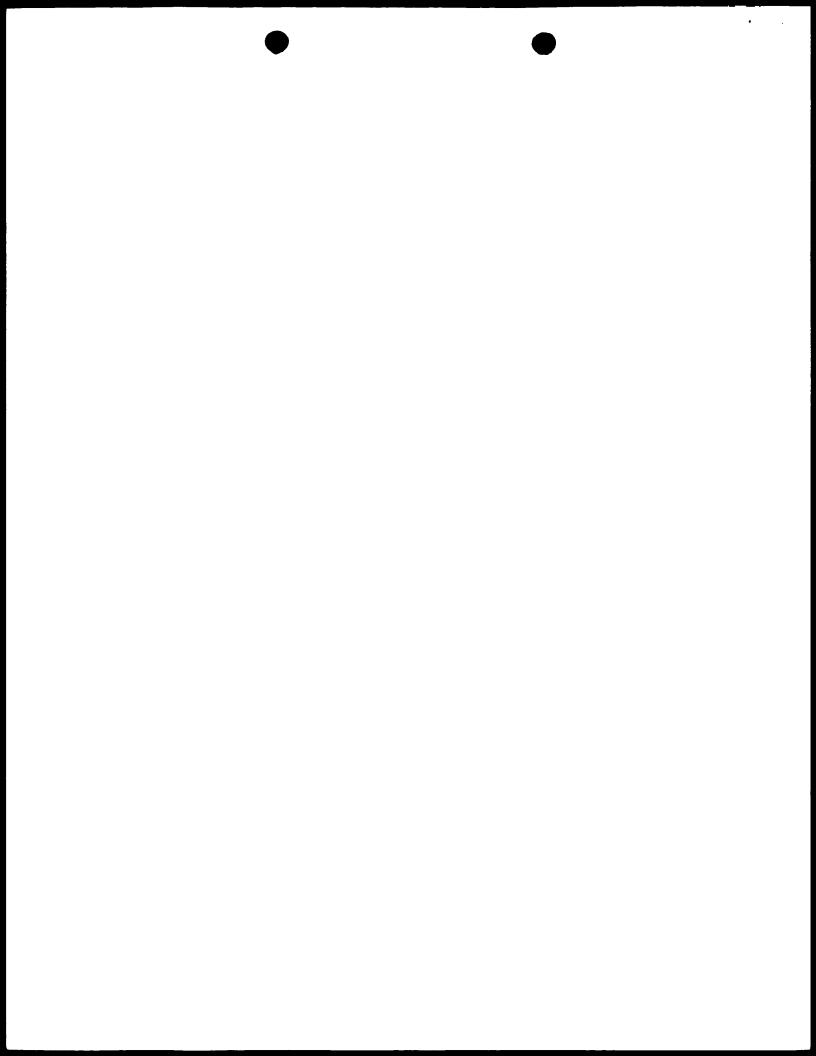
#### 国際出願番号 PCT/JP00/05881

#### 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Α. Int. Cl<sup>7</sup> C08G 14/04 C09D161/34 C09J161/34 CO8L 61/34 調査を行った分野 調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC)) Int. Cl<sup>7</sup> C 0 8 G 1 4 0 0 - 1 4C09D161/00-34 C08L 61 00 - 34C09J161/00-34最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2000年 日本国実用新案登録公報 1996-2000年 日本国登録実用新案公報 1994-2000年 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) CAS ONLINE WPI/L 関連すると認められる文献 引用文献の 関連する カテゴリー\* 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 請求の範囲の番号 JP,11-199656,A(日本化薬株式会社) X 1, 3 27.7月.1999(27.07.99),請求項1(ファミリーなし) 2,4-6Α X IP.4-277575,A(新日鐵化学株式会社) 1.3 - 42.10月.1992(02.10.92),請求項1-2(ファミリーなし)2,5-6Α Χ JP,4-277576,A(新日鐵化学株式会社) 1,3-42.10月.1992(02.10.92) 2.5 - 6Α 請求項1,第2頁左欄第42~50行(ファミリーなし) x C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。 の日の後に公表された文献 \* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 もの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行」 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 文献(理由を付す) 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献 国際調査報告の発送日 国際調査を完了した日 0 5.12.00 28.11.00 国際調査機関の名称及びあて先 9 4 5 6 特許庁審査官(権限のある職員) 4 T (年前) 日本国特許庁 (ISA/JP) 前田 孝泰 郵便番号100-8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3457 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号



## 国際調査報告

C (続き).	関連すると認められる文献	00.
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP,4-277578,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92) 請求項1,第2頁左欄第43~50行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,4-96915,A(新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992(30.03.92) 特許請求の範囲,第2頁左上欄第17~20行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,58-176210,A(新日本製鉄化学工業株式会社) 15.10月.1983(15.10.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	JP,6-80766,A(松下電器産業株式会社) 22.3月.1994(22.03.94) 請求項1,第4頁右欄下から第22行~下から第5行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	GB, 1 2 5 9 9 1 0, A (NAUCHINO—ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organised and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics) 1 2. 1 月. 1 9 7 2 (1 2. 0 1. 7 2) 特許請求の範囲, EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2 0 1 4 1 7 5, A & FR, 2 0 8 6 7 6 6, A	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,2-274714,A(鹿島石油株式会社) 8.11月.1990(08.11.90) 特許請求の範囲,第3頁右下欄第3~18行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	US,4395498,A(Minnesota Mining and Manufacturing Company)26.7月.1983(26.07.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6





#### PCT

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

#### From the INTERNATIONAL BUREAU

NARUSE, Latsuo Central Shinbashi Bldg., 5th Floor 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome

Minato-ku Tokyo 105-0003 **JAPON** 



IMPORTANT	NOTICE

International application No. PCT/JP00/05881

NTK00-1287

Date of mailing (day/month/year) 08 March 2001 (08.03.01) Applicant's or agent's file reference

International filing date (day/month/year)

Priority date (day/month/year) 31 August 1999 (31.08.99)

30 August 2000 (30.08.00)

Applicant

NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD. et al

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

AU, KP, KR, US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AE,AG,AL,AM,AP,AT,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EA,EE,EP,ES, FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KZ,LC,LK,LR;LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OA, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 08 March 2001 (08.03.01) under No. WO 01/16199

#### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

## REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

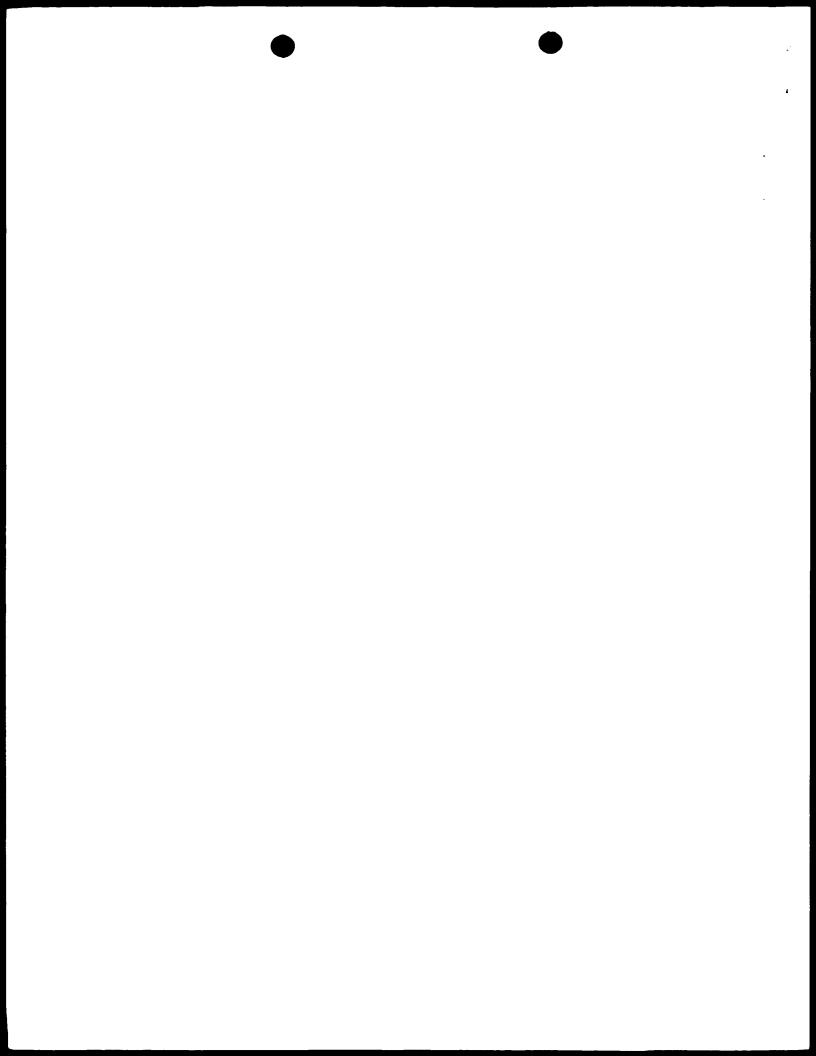
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

J. Zahra

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38



### **PCT**

#### NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To

NARUSE, Katsuo Central Shinbashi Bldg., 5th Floo 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome Minato-ku

Tokyo 105-0003 JAPON



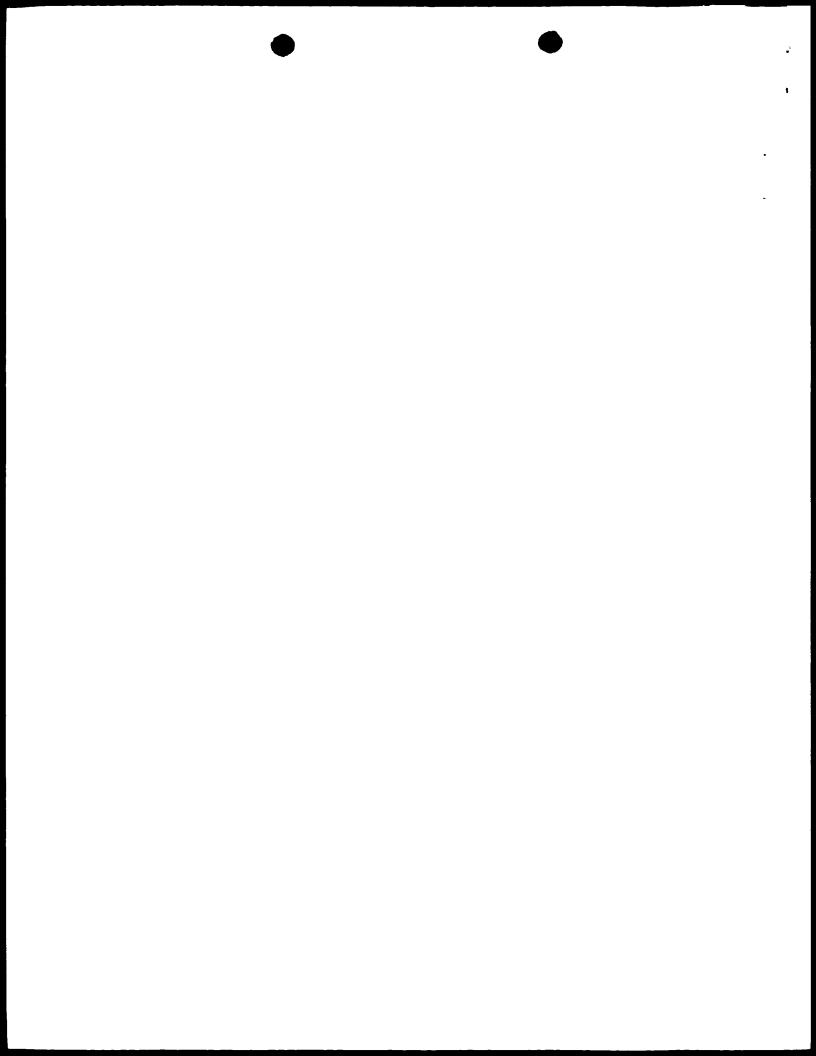
Applicant

NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD. et al

- 1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- 2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- 3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- 4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
31 Augu 1999 (31.08.99)	11/244432	JP	20 Octo 2000 (20.10.00)
03 July 2000 (03.07.00)	2000/200630	JP	20 Octo 2000 (20.10.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  Carlos Naranjo	W
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38	



37

PCT

## 国際予備審査報告

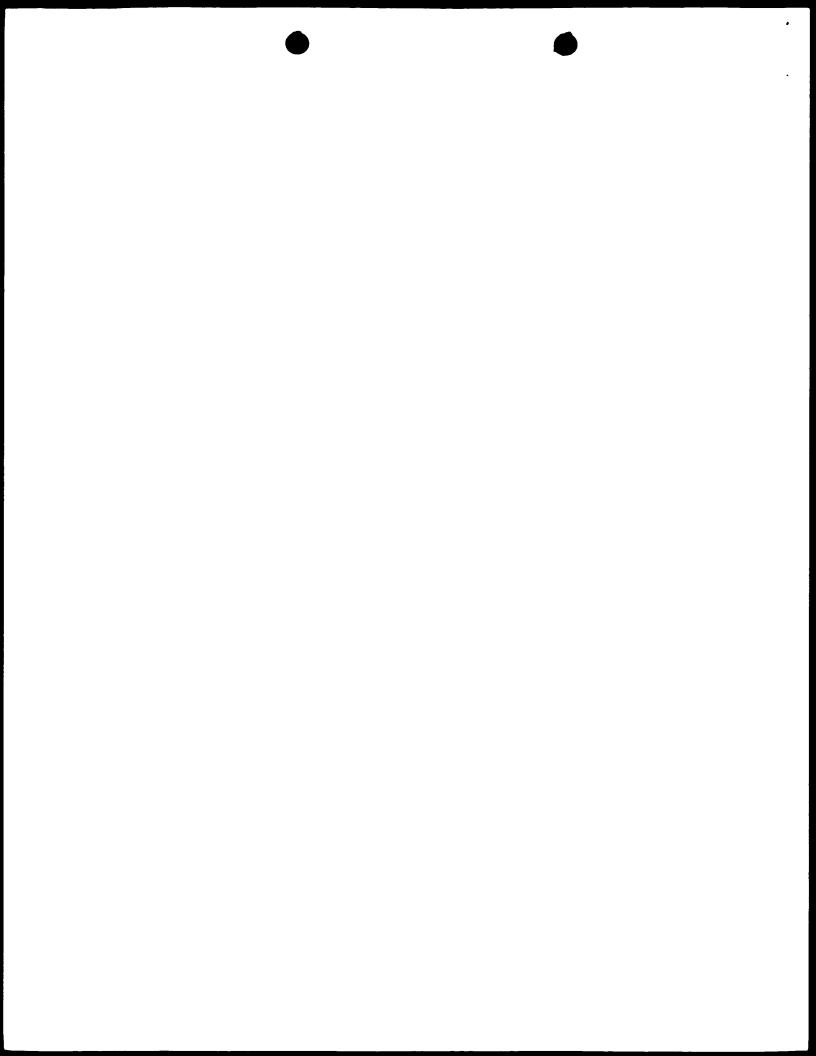
(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

	REC'D	3 0	NOV	2001	
!	WIPO		F	CT	$\dashv$

3 4 5 7

電話番号 03-3581-1101 内線

出願人又は代理人 の書類記号 NTK00-1287	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JP00/05881	国際出願日 (日.月.年) 30.08.00 <b>優</b> 先日 (日.月.年) 31.08.99		
国际付 正刀類 (11 ℃)	8G 14/04, C09D161/34, 8L 61/34, C09J161/34,		
出願人 (氏名又は名称)	新日鐵化学株式会社		
2. この国際予備審査報告は、この表記 この国際予備審査報告には、 査機関に対してした訂正を含ま (PCT規則70.16及びPCT この附属書類は、全部で 3. この国際予備審査報告は、次の内記 I 図際予備審査報告の基礎	ページである。  容を含む。		
IV	を上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるため		
VI       ある種の引用文献         VII       国際出願の不備         VII       国際出願に対する意見			
国際予備審査の請求書を受理した日 19.02.01	国際予備審査報告を作成した日 12.11.01		
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP 郵便番号100~8915 東京都千代田区霞が関三丁目4	前田 孝泰		



#### 国際予備審査報告

## 国際出願番号 PCT/JP00/05881

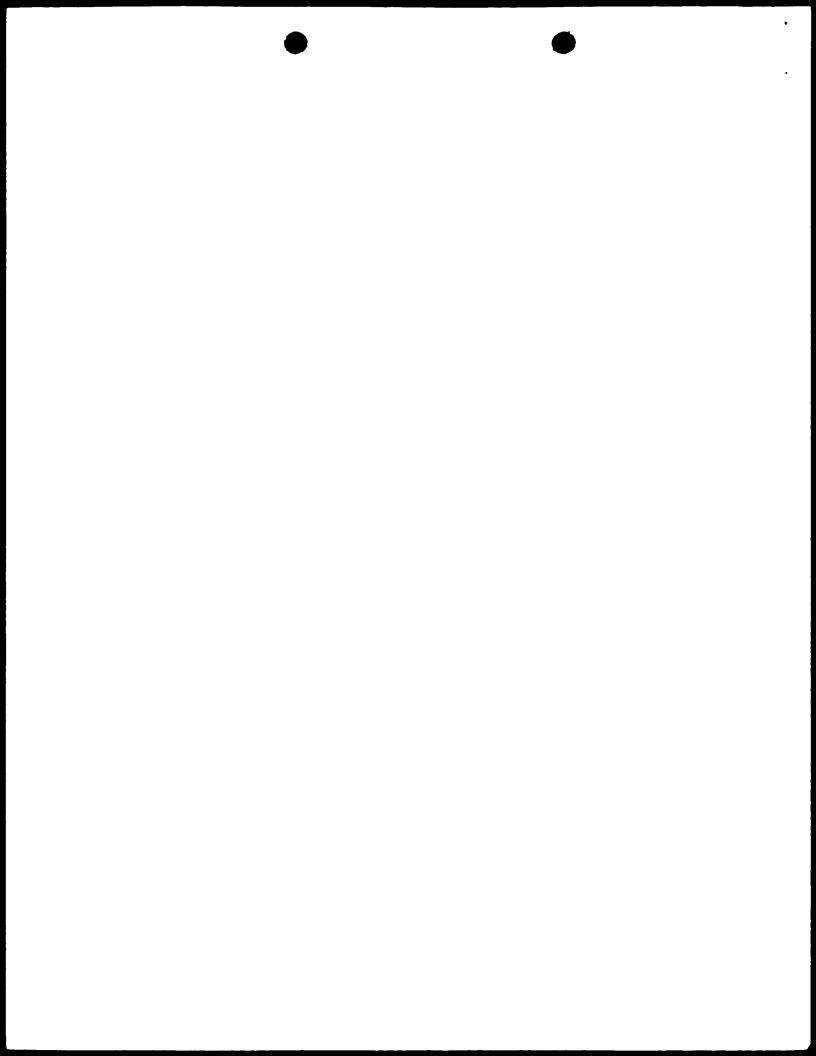
Ι.	[	<b>國際予備審查</b> 報	最告の基礎	_		
1.	Ç	この国際予備額 応答するために P C T 規則70.	<b>上提出された差し替え</b> 用	類に基づいて作成さ; 紙は、この報告書に:	れた。(法第6条(PCT14 <b>須</b> おいて「出顧時」とし、本報告 <b>1</b>	を) の規定に基づく命令に ≸には添付しない。
	x	出願時の国際	<b>奈出願書類</b>			
		明細書 明細書 明細書	第 第 第	ページ、 ページ、 ~ ジ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に扱 付の書	是出されたもの M簡と共に提出されたもの
		請求の範囲 請求の範囲	第 	項、 項、	出願時に提出されたもの PCT19条の規定に基づき	郁正されたもの
		請求の範囲 請求の範囲	第 	項、 項、	国際予備審査の請求書と共に技	と出されたもの ・ ・ ・ ・ ・ に提出されたもの
		図面 図面 図面	第 第 第 ————————————————————————————————	ベージ/図、 ベージ/図、 ベージ/図、		を出されたもの 事簡と共に提出されたもの
		明細書の配列	刊表の部分 第 刊表の部分 第 刊表の部分 第	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提	是出されたもの 事簡と共に提出されたもの
2.					の国際出願の言語である。	
	上記の書類は、下記の言語である 語である。  □ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語 □ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語 □ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語					
3.	:	_			おり、次の配列表に基づき国際 🤄	<b>予備審査報告を行った。</b>
	<ul><li>□ この国際出願に含まれる書面による配列表</li><li>□ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表</li></ul>					
	<ul><li>□ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表</li><li>□ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表</li></ul>					
					国際出願の開示の範囲を超える	
		書面によ	があった る配列表に記載した配 <b>3</b> があった。	列とフレキシブルディ	<sup>、</sup> スクによる配列表に記録した配	列が同一である旨の陳述
4.	☐ ☐	明細書	下記の書類が削除された 第	ページ		
		請求の範囲	第			
		図面	図面の第	~~~	ジ/図	
5.		れるので、	<b>葡番査報告は、補充欄に</b>	「ボしたように、補止」 こものとして作成した	が出願時における開示の範囲を表 。 (PCT規則70.2(c) この補〕 告に孫付する。)	弦えてされたものと認めら Eを含む差し替え用紙は上



## 国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

進歩性 (IS) 。	請求の範囲	2,5 1,3 2,5 1,3	- 6 - 4	無
進歩性 (IS)  産業上の利用可能性 (IA)  文献及び説明 (PCT規則70.7)  請求の範囲 1,3は、国際調査報告で 文献 1 (JP,11-199656,A(F	請求の範囲	2.5 1.3	- 6 - 4	
産業上の利用可能性 (IA)  文献及び説明 (PCT規則70.7)  請求の範囲 1,3は、国際調査報告で 文献 1 (JP,11-199656,A(F	請求の範囲	1 -	- 6	
産業上の利用可能性(IA)  文献及び説明(PCT規則70.7)  請求の範囲1,3は、国際調査報告で 文献1(JP,11-199656,A(F	請求の範囲	1 -	- 6	
文献及び説明 (PCT規則70.7) 請求の範囲1,3は、国際調査報告で 文献1(JP,11-199656,A(F	情求の範囲	1 :	<u> </u>	
請求の範囲1,3は、国際調査報告で 文献1(JP,11-199656,A(F	引用された			
文献 2 (JP, 4-2 7 7 5 7 5, A (新年) (02.10.92)請求項1-2) 文献 3 (JP, 4-2 7 7 5 7 6, A (新年) (02.10.92)請求項1,第2 文献 4 (JP, 4-2 7 7 5 7 8, A (新年) (02.10.92)請求項1,第2 文献 5 (JP, 4-9 6 9 1 5, A (新年) (30.03.92)特許請求の範認 文献 6 (JP, 5 8-1 7 6 2 1 0, A (第1983(15.10.83)特許 (22.03.94)請求項1,第4 文献 7 (JP, 6-8 0 7 6 6, A (松下) (22.03.94)請求項1,第4 文献 8 (GB, 125991 C, A (NAUCH) (22.03.94)請求項1,第4 文献 8 (GB, 125991 C, A (NAUCH) (1972(12.01.72)特許) 文献 9 (JP, 2-2 7 4 7 1 4, A (鹿))	日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日 日	会社) 2.10 会社) 2.10 会社) 2.10 会本502.10 会社) 30.3 社 ( ) 30.3 大欄工業 会第22行 ( ) 50 OVATELSKY IN organised a cialist Repu XAMPLE 1, EXA 社 ( ) 8.11 K ( ) 8.11 F ( ) 8.11	月.1992 月.1992 月.1992 .1992 .1992 .20行) .社)15.10 月.1994 Fから第5行) ISTITUT and existing ablics)12. MPLE 3, TABLE .1990	1月. E 1)



## (54) COATING COMPOSITION AND COATED ALUMINUM MATERIAL

(11) 4-277577 (A) (43) 2.10.1992 (19) JP

(21) Appl. No. 3-38571 (22) 5.3.1991

(71) DAINIPPON TORYO CO LTD (72) HIRONARI TANABE(4)

(51) Int. Cl<sup>5</sup>. C09D163.02

- PURPOSE: To provide a coating compsn, which gives a coating film excellent in corrosion resistance, electrodeposition coating properties, etc., and an aluminum material coated with the compsn, and excellent in formability.
- CONSTITUTION: A coating compsn, which contains a bisphenol epoxy resin consisting of bisphenol A units, bisphenol F units, and epichlorohydrin units and a lubricant powder having a mean particle diameter of  $0.1\text{-}20\mu\text{m}$ , and an aluminum material coated with the compsn.

- (54) ANTICORROSIVE COATING MATERIAL
- (11) 4-277578 (A) (43) 2.10.1992 (19) JP

(21) Appl. No. 3-63886 (22) 5.3.1991

(71) NIPPON STEEL CHEM CO LTD (72) MORIO KIMURA(1)

(51) Int. Cl<sup>5</sup>. C09D175,04,C09D5.08

PURPOSE: To obtain an anticorrosive coating material excellent in anticorrosiveness by incorporating a high-molecular polyol, a polyisocyanate compound, and an inorganic filler into a thermoplastic polycyclic aromatic resin made by reacting a polycyclic aromatic compound with a phenol and a specified cross-linking agent.

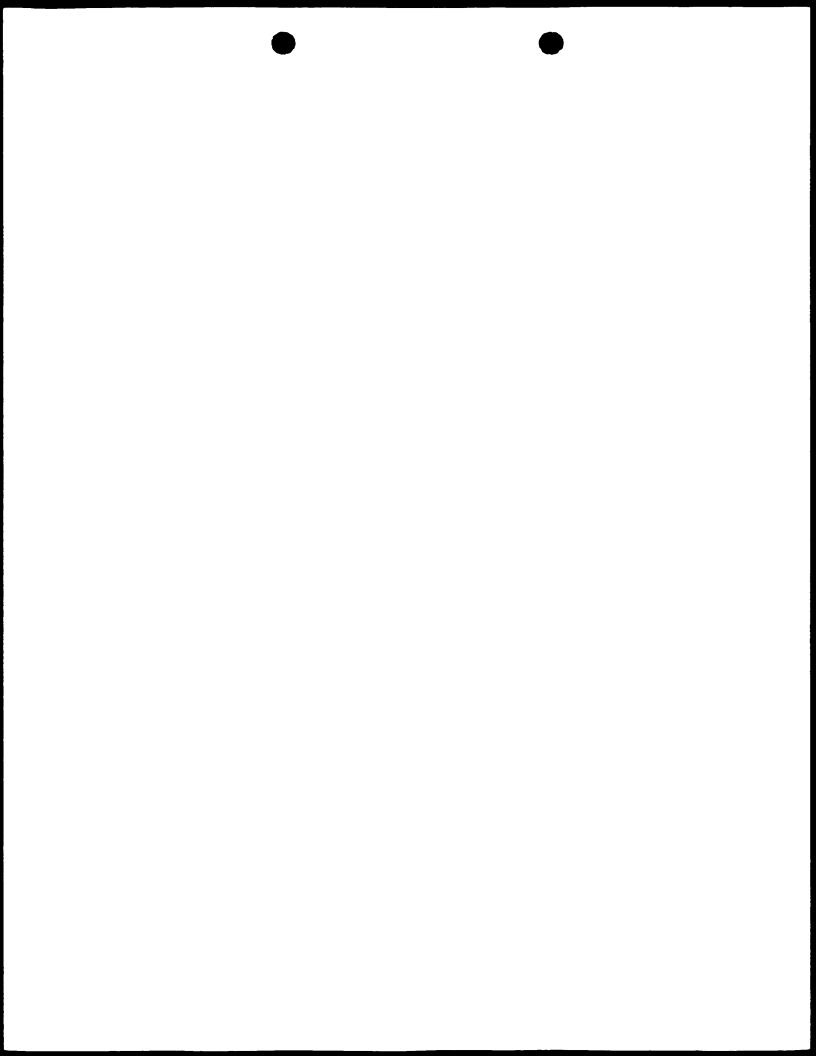
CONSTITUTION: 100mol of a polycyclic aromatic compound (e.g. acenaphthene or diphenyl ether) is reacted with 10-50mol of a phenol (e.g. phenol or a 3-5C alkylphenol) and 50-200mol of a cross-linking agent selected between formaldehyde and dihydroxybenzene (e.g. paraformaldehyde) to prepare a thermoplastic polycyclic aromatic resin having an average molecular weight of 300 to 1,000. This resin, a high-molecular polyol, a polyisocyanate compound, and an inorganic filler are used as principal constituents to give an anticorrosive coating material. Because of excellent anticorrosiveness, it is suitable for use as a heavy-duty anticorrosive coating material.

# (54) THERMOSETTING ADHESIVE AND ADHESIVE SHEET MADE THEREFROM

- (11) 4-277579 (A)
- (43) 2.10.1992 (19) JP
- (21) Appl. No. 3-63911 (22) 4.3.1991
- (71) NITTO DENKO CORP (72) YUTAKA TOZAKI(3)
- (51) Int. Cl<sup>5</sup>. C09J4.00,C09J7 02

PURPOSE: To obtain a thermosetting adhesive and an adhesive sheet which are excellent in storage stability.

CONSTITUTION: A thermosetting adhesive which is composed of a compound having at least one radical-reactive unsaturated bond in the molecule and a curing agent or free radical initiator incompatible with the unsaturated compound; and an adhesive sheet which has a layer of the adhesive on one side or both sides of a base sheet. The curing agent or free radical initiator can be dispersed uniformly as a whole so that good bonding can be effected by heating for a short time.



## **PCT**

## **NOTIFICATION OF TRANSMITTAL** OF COPIES OF TRANSLATION OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY **EXAMINATION REPORT**

(PCT Rule 72.2)

#### From the INTERNATIONAL BUREAU



Central Shinbashi Bldg., 5th Floor 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome Minato-ku Tokyo 105-0003 **JAPON** 

Date of mailing (day/month/year) 15 May 2002 (15.05.02)	
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/05881	International filing date (day/month/year) 30 August 2000 (30.08.00)

## 1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

## 2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CA,CN,KP,RO,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

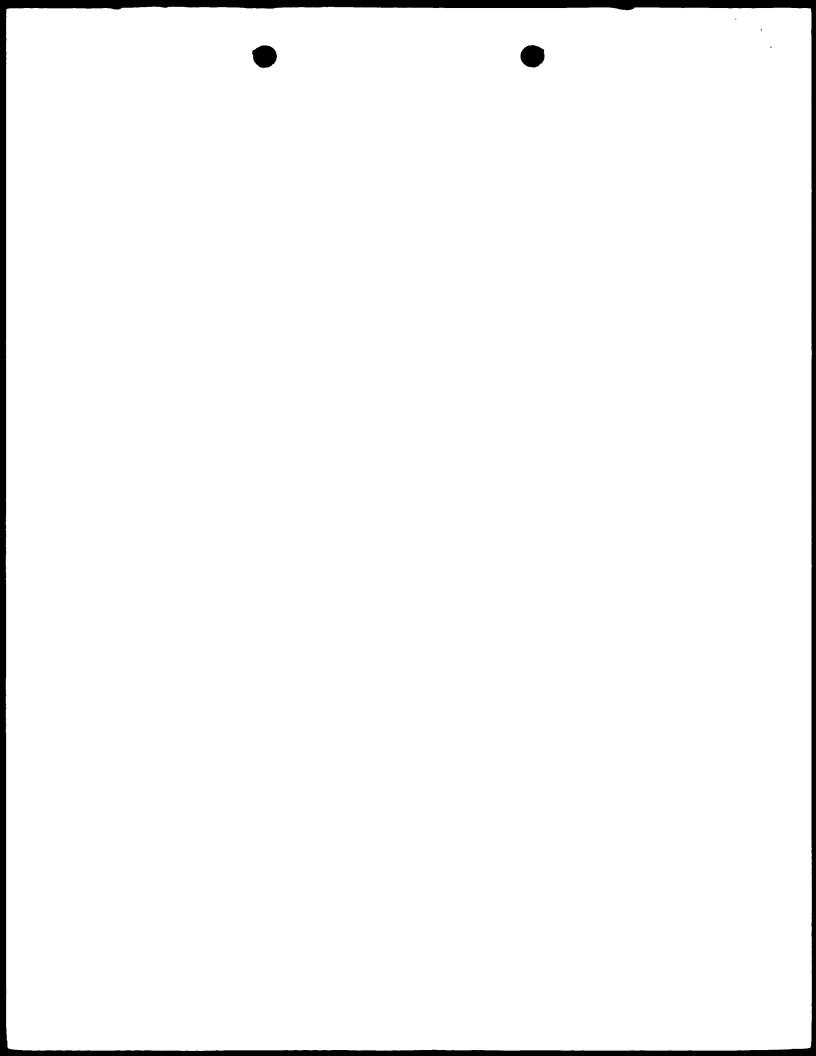
AP,EA,AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CH,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EE,ES,FI,GB, GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN, MW,MX,MZ,NO,NZ,PL,PT,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZW,OA

## 3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

<del> </del>		
The International Bureau of WIPO	Authorized officer	
34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Eliott PERETTI	
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38	



# Translation

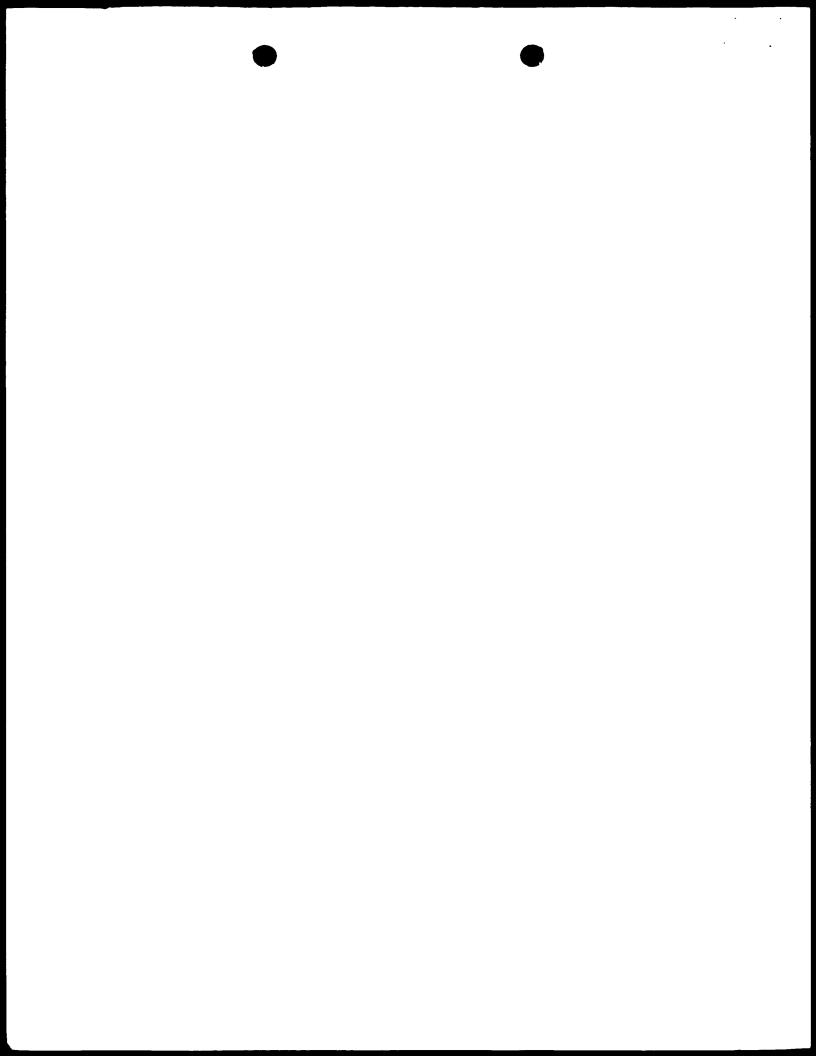
# PATENT COOPERATION TREE Y

# **PCT**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

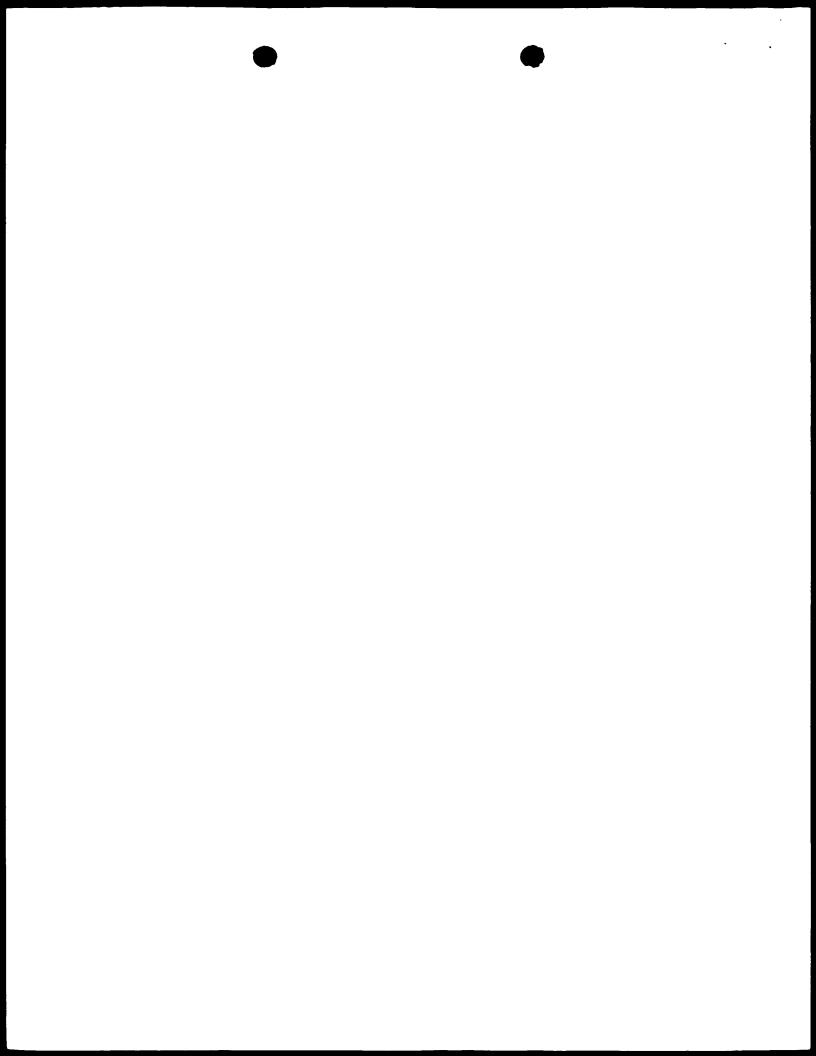
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287		stificationofTransmittalofInternational Preliminary nation Report (Form PCT/IPEA/416)		
International application No. PCT/JP00/05881	International filing date (day month ye 30 August 2000 (30.08.00)			
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08G 14/04, C08L 61/34, C09D 161/34, C09J 161/34				
Applicant N	IPPON STEEL CHEMICAL CO	., LTD.		
<ol> <li>This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</li> <li>This REPORT consists of a total of</li></ol>				
been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (so Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).  These annexes consist of a total of sheets.				
3. This report contains indications relating to the following items:    I   Basis of the report				
Date of submission of the demand  19 February 2001 (19.6)		2 November 2001 (12.11.2001)		
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized off	icer		
Facsimile No	Telephone No.			





rnational application No

I. I	Basis	sis of the report	
1.	With	ith regard to the elements of the international application:*	
	$\boxtimes$	the international application as originally filed	
	一	the description:	
		pages	, as originally filed
		pages	. filed with the demand
		pages, filed with the letter	of
		7	
		the claims:	, as originally filed
		pages, as amended (to	gether with any statement under Article 19
		pages	, filed with the demand
		pages, filed with the letter	of
	$\overline{}$	٦	
	لـا	the drawings:	as originally filed
		pages	filed with the demand
		pages	. med with the demand
		pages, filed with the letter	01
		the sequence listing part of the description:	
		pages	, as originally filed
		pages	, filed with the demand
		pages, filed with the letter	of
2.	46 ~ :	ith regard to the language, all the elements marked above were available or furnished e international application was filed, unless otherwise indicated under this item. nese elements were available or furnished to this Authority in the following language	
		the language of a translation furnished for the purposes of international search (un	der Rule 23.1(b)).
		the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	
		the language of the translation furnished for the purposes of international prelin or 55.3).	ninary examination (under Rule 55.2 and/
3.	Wit prel	Tith regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the intelliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:	nternational application, the international
		contained in the international application in written form.	
		filed together with the international application in computer readable form.	
		furnished subsequently to this Authority in written form.	
		furnished subsequently to this Authority in computer readable form.	
		The statement that the subsequently furnished written sequence listing document international application as filed has been furnished.	es not go beyond the disclosure in the
		The statement that the information recorded in computer readable form is ide been furnished.	entical to the written sequence listing has
4.		The amendments have resulted in the cancellation of:	
		the description, pages	
		the claims, Nos.	
		the drawings, sheets/fig	
5.		This report has been established as if (some of) the amendments had not been mobeyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c))	ade, since they have been considered to go
*	in t	eplacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they ad 70.17)	invitation under Article 14 are referred to do not contain amendments (Rule 70.16
**		ny replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 an	d annexed to this report



In ational application No PCT/JP 00/05881

V.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
1	citations and explanations supporting such statement

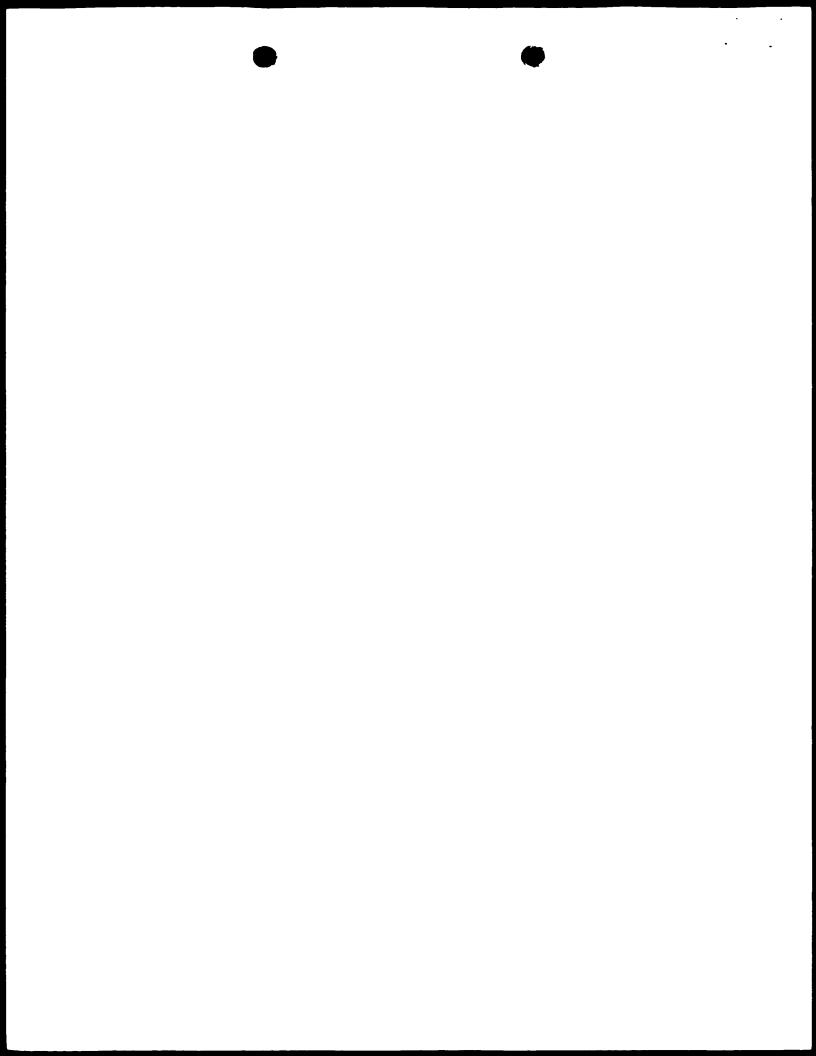
Statement			
Novelty (N)	Claims	2, 5-6	YES
• ` `	Claims	1, 3-4	NO
Inventive step (IS)	Claims	2, 5-6	YES
	Claims	1, 3-4	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

Claims 1 and 3 are not novel because they are disclosed in the following documents cited in the international search report.

- Document 1: JP, 11-199556, A (Nippon Kayaku Co., Ltd.), 27 July 1999 (27.07.99); Claim 1
- Decument 2: JP, 4-277575, A ( Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1992 (02.10.92); Claims 1 and 2
- Document 3: JP, 4-277576, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 42-50
- Execument 4: JP, 4-277578, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (62.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 43-50
- Document 5: JP, 4-96915, A (Nippor Steel Chemical Co., Ltd.), 30 March 1992 (30.03.92); claims and page 2, upper left column, lines 17-20
- Document 6: JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 15 October 1983 (15.10.83); claims
- Document 7: JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 22 March 1994 (22.03.94); Claim 1, page 4, right column, line 22 from bottom to line 5 from bottom

Document 8: GB, 1253910, A (Nauchino-Issledovatelsky



In ational application No PCT/JP 00/05881

Institut Plasticheskikh Mass, a State Enterprise, organized and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist

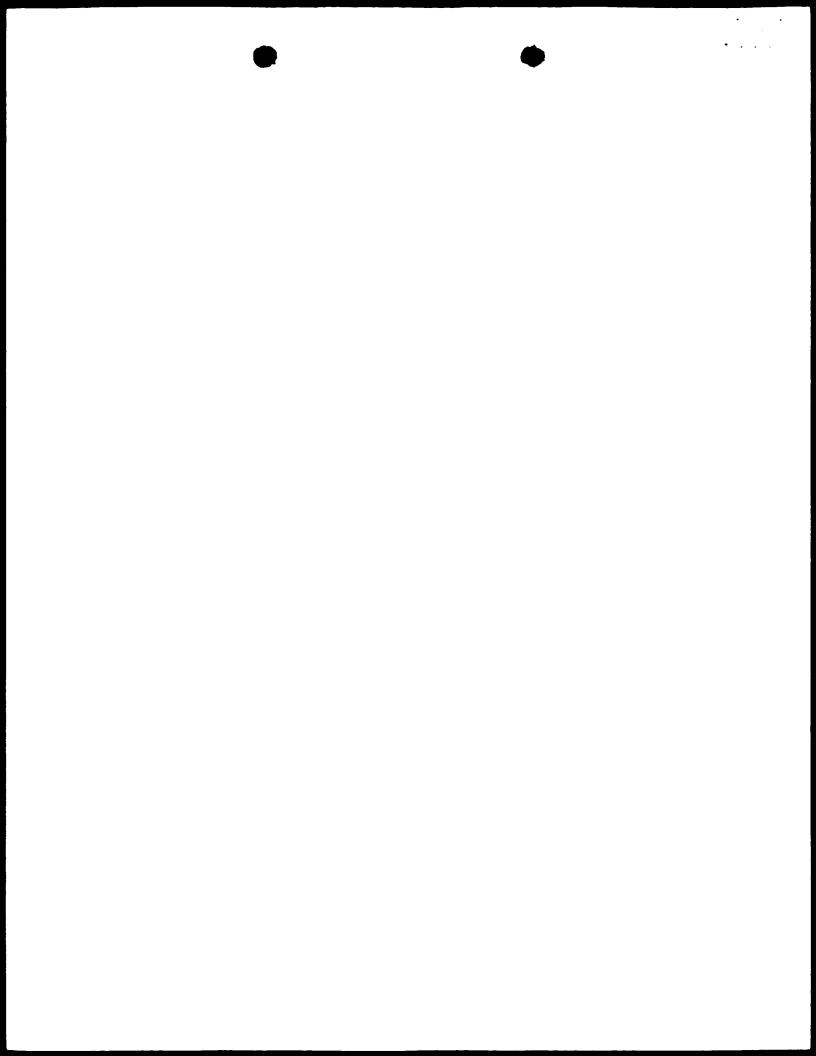
Republics), 12 January 1972 (12.01.72);

claims, Example 1, Example 3 and Table 1)

Document 9: JP, 2-274714, A (Kashima Oil Company, Limited), 8 November 1990 (08.11.90); claims and page 3, lower right column, lines 3-18

Document 10: US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July 1983 (26.07.83); claims

Claim 4 is also not novel, since it is disclosed in Document 2, Document 3, Document 4, Document 5 and Document 8 above.



# Translation In

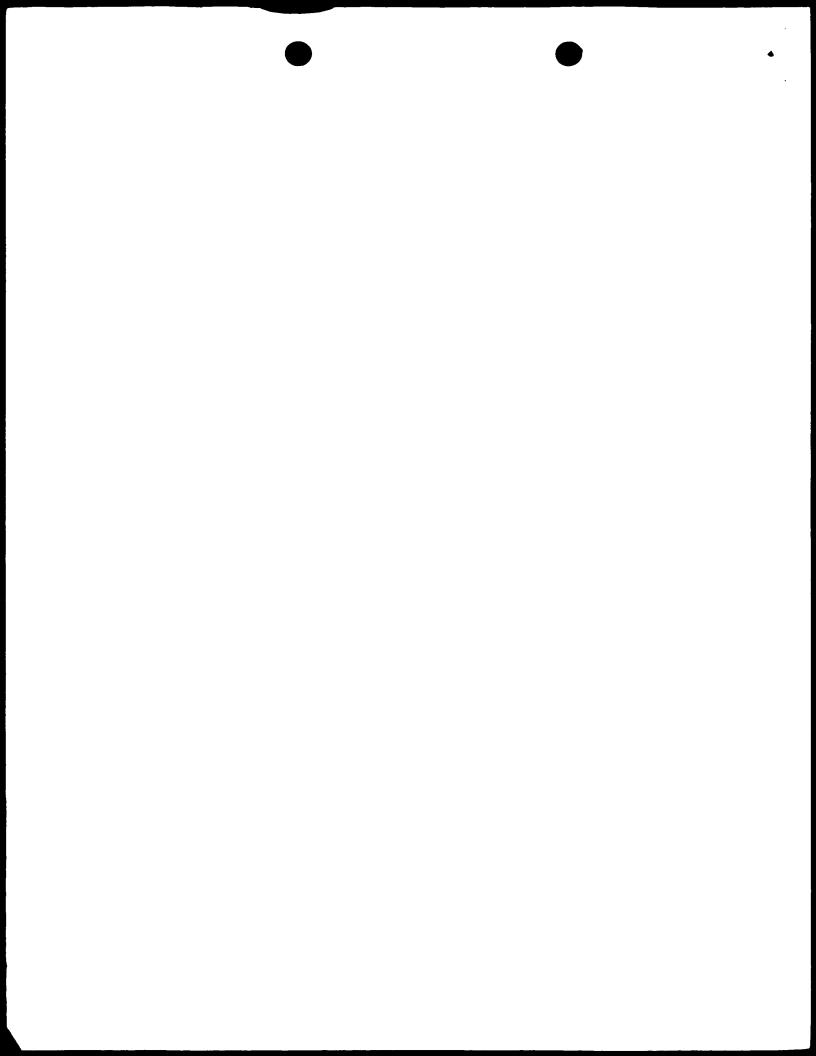
# PATENT COOPERATION EAT

# **PCT**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

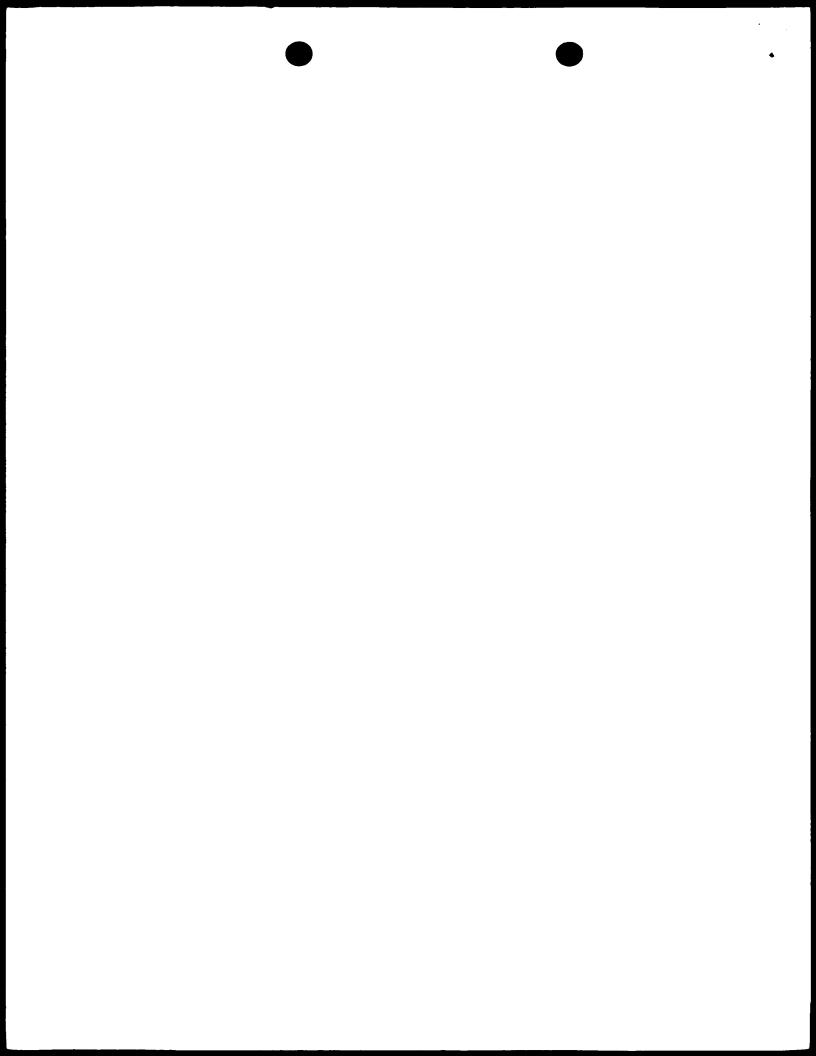
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287	FOR FURTHER ACTION		ionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/05881	International filing date (day a 30 August 2000 (30		Priority date (day month year) 31 August 1999 (31.08.99)
International Patent Classification (IPC) or n C08G 14 04, C08L 61/34, C09D			
Applicant	IPPON STEEL CHEMICA	AL CO., LT	D.
and is transmitted to the applicant at 2. This REPORT consists of a total of	ccording to Article 36.  4 sheets, includi	ng this cover s	
been amended and are the ba Rule 70.16 and Section 607 of	nied by ANNEXES, i.e., sheet sis for this report and/or sheets of the Administrative Instruction stal of sheets.	containing rec	iption, claims and/or drawings which have stifications made before this Authority (see CT).
These whileves consist of a to			
Lack of unity of inv	of opinion with regard to novelt ention under Article 35(2) with regard ations supporting such statemen	to novelty, in	ep and industrial applicability ventive step or industrial applicability;
• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	e international application s on the international applicatio	n	
Date of submission of the demand	Date o	f completion of	of this report
19 February 2001 (19.0	02.01)	12 No	wember 2001 (12.11.2001)
Name and mailing address of the IPEA JP	Autho	rized officer	
Facsimile No.	Telent	one No.	





International application No.

1. 1	Basis	of the report		
1.	With	regard to the elem	nents of the international application:*	
	$\boxtimes$	the international	application as originally filed	
	$\overline{\Box}$	the description:		
		pages		, as originally filed
		pages		filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
		the claims:		
		pages		, as originally filed
		pages	. as amended (together wit	h any statement under Article 19
		pages		filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
		the drawings:		
	_	pages		. as originally filed
		pages		, filed with the demand
		pages	filed with the letter of	
	$\Box$	he sequence listing	ng part of the description:	
		•		, as originally filed
		pages	, filed with the letter of	
2.	the is	nternational applicate elements were average the language of a the language of p	guage, all the elements marked above were available or furnished to this A cation was filed, unless otherwise indicated under this item, wailable or furnished to this Authority in the following language  a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 2 publication of the international application (under Rule 48.3(b)).  If the translation furnished for the purposes of international preliminary examples.	which is: 23.1(b)).
3.	With	ninary examinatio	nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international on was carried out on the basis of the sequence listing:	al application, the international
	$\mathbb{H}$		e international application in written form.	
	H		ith the international application in computer readable form.	
	$\vdash$	•	equently to this Authority in written form.	
	님		equently to this Authority in computer readable form.	the state of the terminal in the
	Ш		that the subsequently furnished written sequence listing does not go uplication as filed has been furnished.	beyond the disclosure in the
		The statement the been furnished.	that the information recorded in computer readable form is identical to	the written sequence listing has
4.		The amendments	ts have resulted in the cancellation of:	
		the descri	ription, pages	
		the claim:	ns, Nos.	
		the drawi	rings, sheets/fig	
5.			been established as if (some of) the amendments had not been made, since losure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	they have been considered to go
•	in th	acement sheets who is report as "orig	hich have been furnished to the receiving Office in response to an invitation iginally filed" and are not annexed to this report since they do not co	under Article 14 are referred to ontain amendments (Rule 70.16
**	Any i	eplacement sheet o	containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed	to this report



. POT, JP | 00 + 05 5 6 1

v.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

Statement			
Novelty (N)	Claims	2, 5-6	YES
	Claims	1, 3-4	NO
Inventive step (IS)	Claims	2, 5-6	YES
·	Claims	1, 3-4	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
11	Claims		NO

#### Citations and explanations

Claims 1 and 3 are not novel because they are disclosed in the following documents cited in the international search report.

Document 1: JP, 11-199556, A (Nippon Kayaku Co., Ltd.), 27 July 1999 (27.07.99); Claim 1

Document 2: JP, 4-277575, A ( Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1992 (02.10.92); Claims 1 and 2

Document 3: JP, 4-277576, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 42-50

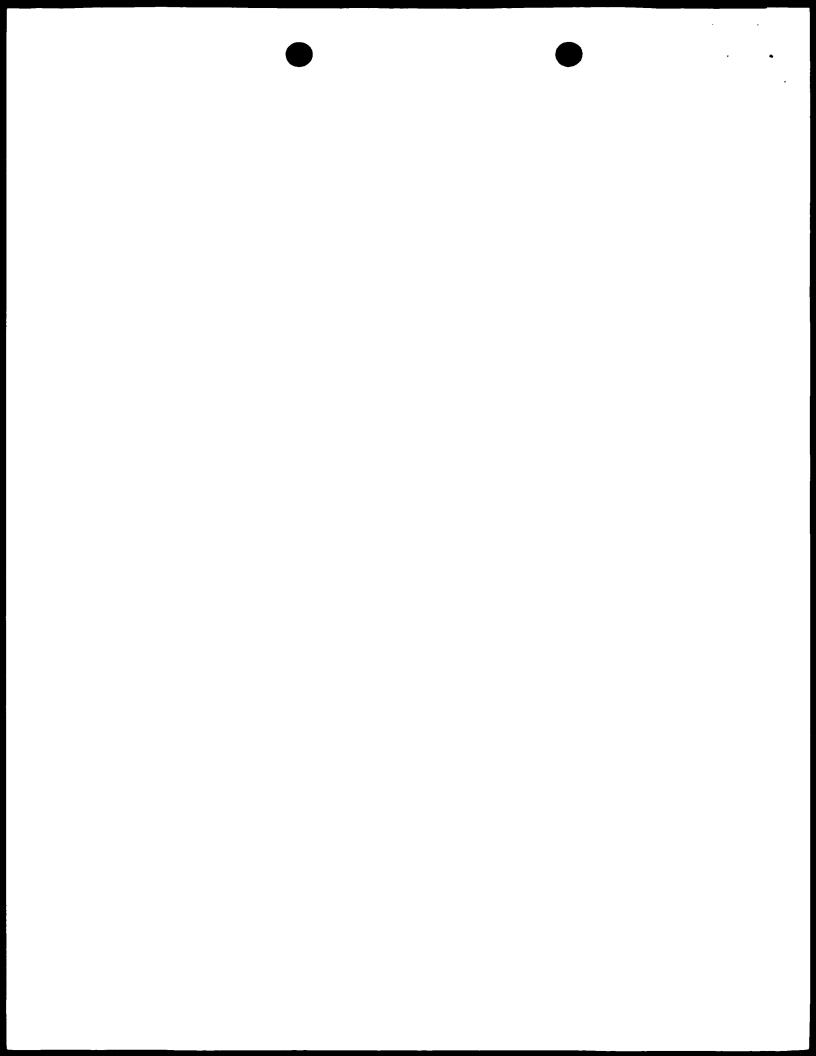
Document 4: JP, 4-277578, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 43-50

Document 5: JP, 4-96915, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 30 March 1992 (30.03.92; claims and page 2, upper left column, lines 17-20

Document 6: JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd., 15 October 1983 (15.10.33); claims

Document 7: JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd., 22 March 1994 (22.03.94); Claim 1, page 4, right column, line 22 from bottom to line 5 from bottom

Document 8: 3B, 1259910, A (Nauchino-Issledovatelsky



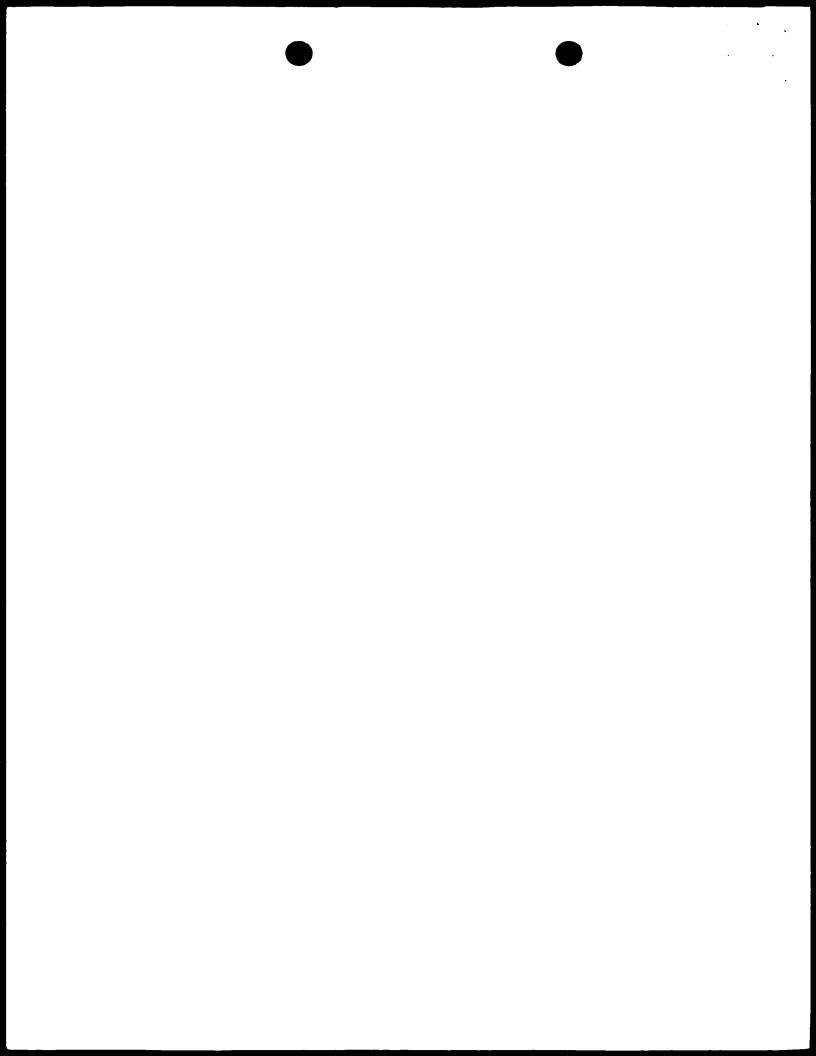
nternational application No

Institut Flasticheskikh Mass, a State
Enterprise, organized and existing under the
Laws of the Union of Soviet Socialist
Republics), 12 January 1972 (12.01.72;
claims, Example 1, Example 3 and Table 1)

Document 9: JP, 2-274714, A (Kashima Dil Company, Limited), 8 November 1990 (06.11.90); claims and page 3, lower right column, lines 3-18

Document 10: US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July 1983 +26.07.83); claims

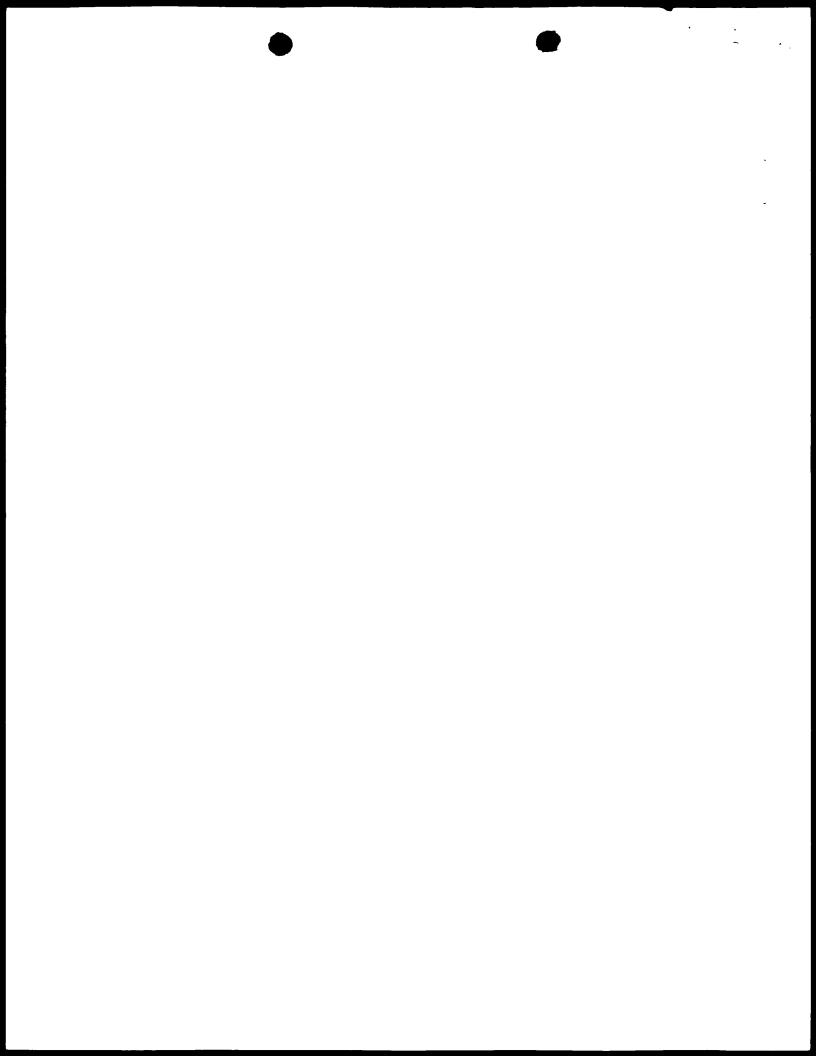
Claim 4 is also not novel, since it is disclosed in Document 2, Document 3, Document 4, Document 5 and Document 8 above.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

	SIFICATION OF SUBJECT MATTER		<del>-</del> :-
Int.		.61/34	
	C08L 61/34 C09J1	.61/34	
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both na	tional classification and IPC	
	S SEARCHED		
Minimum do	ocumentation searched (classification system followed	by classification symbols)	
	$Cl^7 = C08G = 14/00-14 = C09D1$	61/00-34	
	C08L 61/00-34 C09J1	61/00-34	
	ion searched other than minimum documentation to the		
Jits	uyo Shinan Koho 1926-1996	Jitsuyo Shinan Toroku K	
NOKA	i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000	Toroku Jitsuyo Shinan K	Ono 1994-2000
	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)
	ONLINE		
WPI/	L		
ł			
C DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 11-199656, A (NIPPON KAYAKU		1,3
A	27 July, 1999 (27.07.99),	, (0., 111).),	2,4-6
	Claim 1 (Family: none)		2,10
	<del>-</del>		
Х	JP, 4-277575, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4
A	02 October, 1992 (02.10.92),		2,5-6
	Claims 1 to 2 (Family: none)		
х	JP, 4-277576, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4
A	02 October, 1992 (02.10.92),		2,5-6
	Claim 1; page 2, left column, 1	ines 42 to 50	
	(Family: none)		
х	JP, 4-277578, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.).	1,3-4
A	02 October, 1992 (02.10.92),		2,5-6
	Claim 1; page 2, left column, l	ines 43 to 50	
	(Family: none)		
х	TD 4 00015 A (Ninner Cheel Ch	amical Ca Ital	3 3 4
A	JP, 4-96915, A (Nippon Steel Ch 30 March, 1992 (30.03.92),	lemical co., Ltd./,	1,3-4 2,5-6
	Claims; page 2, upper left colu	ımn, lines 17 to 20	2,3 0
	(Family: none)	·	_
Further	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.	
Special	categories of cited documents:	"T" later document published after the inte	rnational filing date or
"A" docume	ent defining the general state of the art which is not	priority date and not in conflict with the	e application but cited to
	red to be of particular relevance  Iocument but published on or after the international filing	understand the principle or theory und "X" document of particular relevance; the	
date "L" docume	nat which may throw doubte on priority drive(a) or which is	considered novel or cannot be conside	
	ent which may throw doubts on priority claim(s) or which is establish the publication date of another citation or other	step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the	
	reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	considered to involve an inventive ster combined with one or more other such	when the document is
means	an reterring to an oral disclosure, use, exhibition of other	combination being obvious to a persor	•
	ent published prior to the international filing date but later e priority date claimed	"&" document member of the same patent	family
	actual completion of the international search	Date of mailing of the international sear	ch report
	ovember, 2000 (28.11.00)	05 December, 2000 (	
Name and m	ailing address of the ISA/	Authorized officer	
	nese Patent Office		
Facsimile No		Telephone No.	



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

1,3 2,4-6 1,3 2,4-6 1,3-4 2,5-6
2,4-6  1,3-4 2,5-6  1,3 2,4-6
1,3 2,4-6
2,4-6

